

## Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks

Jen Supra





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

# Kühlkonzepte für Hochtemperatur- Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks

Jen Supra

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 209

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-946-1



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber  
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH  
Zentralbibliothek, Verlag  
52425 Jülich  
Tel.: +49 2461 61-5368  
Fax: +49 2461 61-6103  
E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
[www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2014

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 209

D 82 (Diss., RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-89336-946-1

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/juwel](http://www.fz-juelich.de/zb/juwel)

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder  
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder  
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

# Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks

von Jen Supra

## Kurzfassung:

Ein typischer Anwendungsbereich der Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC) ist die Bordstromerzeugung in mobilen Anwendungen. Die Betriebstemperatur liegt über 120 °C und ist aus Gründen der Festigkeitsgrenzen verwendeter Materialien und Lebensdauieranforderungen auf maximal 180 °C beschränkt. Aufgrund des hohen Temperaturniveaus kann die neben dem Strom erzeugte Wärme in dem System oder der Anwendung effizient weiterverwendet werden.

Gegenstand dieser Arbeit ist die Untersuchung verschiedener möglicher Kühlkonzepte hinsichtlich ihrer Eignung für den Einsatz in der HT-PEFC, vor allem im Hinblick auf die Verwendung als Bordstromerzeugungseinheit im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem. Die avisierte Leistung soll im unteren Kilowatt-Bereich liegen, das heißt, das Kühlsystem muss so ausgelegt werden, dass eine HT-PEFC für die Leistungsklasse 1 bis 10 kW<sub>el</sub> innerhalb der Spezifikationen robust und dauerhaft betrieben werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit werden die möglichen Kühlmethoden dargestellt.

Zur Beurteilung der potentiellen Kühlkonzepte erfolgt eine rechnerische Auslegung der betrachteten Kühlkonzepte. Zur weiteren Verifikation der analytischen Abschätzungen werden 3D-CFD-Simulationen bzw. experimentelle Untersuchungen anhand von Stacks mit einer aktiven Fläche von 200 cm<sup>2</sup> durchgeführt. Beachtet wird neben der ausreichenden Kühlleistung auch das Verhalten bei einem dynamischen Betrieb. Das Aufheizen (Kaltstart) und die Kühlung verschiedener Betriebspunkte sollen möglich sein.

Für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFCs eignen sich alle aktiven Kühlkonzepte, die Wärmeträgerflüssigkeit, Luft oder Wasser als Kühlmedium verwenden. Die drei Wärmeträgermedien sind geeignet um Stacks der kW-Klasse zu kühlen. Eine Regelung der Eintrittsparameter des Wärmeträgermediums ist aber bei der Verwendung von Luft (Volumenstrom) erforderlich und bei Wärmeträgerflüssigkeit (Eintrittstemperatur) vorteilhaft bzw. bei der externen Kühlung erforderlich. Die Wasserkühlung unter Berücksichtigung des latenten Wärmeübergangs zeigt das höchste Potential, allerdings verhindert der bei diesem Kühlkonzept notwendige Druck im Kühlkreislauf den Einsatz mit aktuellen Stackmaterialien. Insgesamt erweisen sich die Wärmeträgerflüssigkeitskühlungen mit gekapselten Kühlzellen und die externe Heatpipe-unterstützte Kühlung als die am besten geeigneten Kühlkonzepte, um einen dauerhaft sicheren Stackbetrieb zur Bordstromerzeugung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem zu ermöglichen.



# Cooling Methods for High-temperature Polymer Electrolyte Fuel Cell Stacks

by Jen Supra

## Abstract:

A typical application of the high-temperature polymer electrolyte fuel cell (HT-PEFC) is on-board power generation for mobile applications. The operating temperature must be between 120 °C and 180 °C, due to material rigidity and degradation. At this high temperature, the generated heat can be used elsewhere in the system or mobile application.

The subject of this thesis is an investigation of possible cooling concepts in the context of their suitability for use in a HT-PEFC, and in particular with regard to the use as onboard power generation together with a fuel processor. The design of the cooling system must be capable of providing sufficient cooling for a robust and durable HT-PEFC system operating in a power range between 1 and 10 kW<sub>el</sub>. In this work, various possible cooling methods are presented.

In order to evaluate the various potential cooling concepts, calculations based upon the various cooling concept designs are performed. For further verification, 3D CFD simulations and experimental investigations are carried out on stacks with an active cell area of 200 cm<sup>2</sup>. In addition to sufficient cooling, the dynamic operation behavior is investigated. Heating (cold start) and cooling at various operating points should be possible.

The main findings are, that all active cooling concepts, which use heat transfer fluid, air or water as cooling media, are suitable to cool HT-PEFCs. All three heat transfer media are suitable to cool stacks in the kW range. A control of the inlet flow rate is required when air is used. Controlling the inlet temperature of the heat transfer fluid is necessary for the external cooling concept and advantageously for the other heat transfer fluid based concepts. When taking into account latent heat transfer, water shows the highest potential for cooling, however the need for pressurization in the cooling loop prevents widespread use when current stack materials are used. Designs based on the use of the heat transfer fluid are the most practical for cooling stacks in the kW class used for on-board power supply in combination with a fuel processing system.



# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
1.1	Motivation und Zielsetzung .....	1
1.2	Vorgehensweise und Gliederung .....	3
2	Stand der Technik.....	5
2.1	Übersicht Kühlkonzepte .....	6
2.2	Literaturrecherche.....	7
2.2.1	Luftkühlung .....	7
2.2.2	Wärmeträgerflüssigkeitskühlung .....	8
2.2.3	Wasserkühlung .....	8
2.2.4	Externe Kühlung .....	9
3	Grundlagen zur Auslegung der Kühlkonzepte .....	13
3.1	Wärmeerzeugung in der HT-PEFC .....	13
3.2	Wärmetransportmechanismen .....	16
3.3	Energiebilanz für einen HT-PEFC-Stack .....	18
3.3.1	Adiabate Randbedingungen .....	20
3.3.2	Energiebilanz eines thermisch nicht isolierten Stacks .....	23
3.4	Wärmeübertragung an die Kühlkanäle des HT-PEFC-Stacks .....	27
3.5	Aufbau und Funktionsweise von Heatpipes .....	28
4	Messtechnik und Versuchsbedingungen.....	33
4.1	Teststand.....	33
4.2	Temperaturmessung.....	33
5	Wärmeträgerflüssigkeitskühlung .....	35
5.1	Interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mittels integrierter Flowfields .....	35
5.1.1	Versuchsaufbau.....	36
5.1.1.1	Stackaufbau und Funktionsweise des Kühlsystems .....	36
5.1.1.2	Temperaturmessung .....	37
5.1.2	Ergebnisse der Temperaturverteilungsmessungen .....	38
5.1.3	Parameterstudie mit variierenden Eintrittsbedingungen .....	41
5.1.4	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	46
5.2	Interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen .....	48
5.2.1	Ansatz zur Berechnung der Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle .....	48
5.2.2	Validierung der Auslegung.....	54

5.2.3	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	56
5.3	Externe Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mit Heatpipe-Unterstützung .....	58
5.3.1	Auslegung einer Heatpipe-unterstützten Kühlung mittels CFD .....	58
5.3.1.1	Modellbildung .....	59
5.3.1.2	Ergebnisse der CFD-Simulationen.....	60
5.3.1.3	Vorversuche anhand einer Heatpipe-Kühlzelle .....	65
5.3.2	Experimentelle Untersuchung einer Heatpipe-unterstützten Kühlung .....	66
5.3.2.1	Versuchsaufbau.....	66
5.3.2.2	Ergebnisse und Diskussion.....	68
5.3.3	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	75
6	Luftkühlung.....	77
6.1	Externe passive Kühlung mit freier Konvektion und Strahlung.....	77
6.1.1	Modellbildung und Geometrievariationen .....	78
6.1.2	Einfluss von Geometrievariationen auf die Energiebilanz .....	80
6.1.2.1	Einfluss von verschiedenen Isolationsdicken .....	80
6.1.2.2	Einfluss der Zellenzahl.....	82
6.1.2.3	Einfluss der aktiven Fläche.....	83
6.1.2.4	Einfluss des Seitenverhältnisses.....	84
6.1.3	Bestimmung der orts aufgelösten Temperaturverteilung .....	85
6.1.4	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	87
6.2	Interne Luftkühlung in separatem Kühlflowfield .....	87
6.2.1	Auslegung eines luftgekühlten HT-PEFC-Stacks.....	87
6.2.2	Versuchsaufbau .....	91
6.2.3	Ergebnisse und Diskussion .....	92
6.2.4	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	97
6.3	Kathodenluftkühlung.....	99
6.3.1	Berechnung des notwendigen Kathodenluftüberschusses .....	99
6.3.2	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	101
7	Wasserkühlung .....	103
7.1	Parameter der Auslegung einer Wasserkühlung .....	104
7.2	Wasserkühlung ohne Phasenwechsel.....	105
7.3	Wasserkühlung mit Phasenwechsel .....	106
7.4	Beurteilung des Kühlkonzeptes .....	109
8	Vergleich und Bewertung der untersuchten Kühlkonzepte.....	111

8.1	Anforderungen an die Kühlkonzepte .....	111
8.2	Einfluss des Wärmeträgermediums .....	112
8.3	Einfluss des Kühlkonzeptes .....	114
8.4	Einfluss des Systems.....	119
8.5	Wesentliche Vor- und Nachteile.....	122
9	Realisierung einer Kühlung für einen HT-PEFC-Stack der kW-Klasse.....	125
9.1	Auslegung der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mit gekapselten Kühlzellen .....	126
9.2	Experimenteller Versuchsaufbau .....	128
9.3	Beurteilung des Kühlkonzeptes.....	135
10	Diskussion der untersuchten Kühlkonzepte.....	137
10.1	Wärmeträgermedium .....	137
10.2	Temperaturverteilung in der Zell-Ebene.....	138
10.3	Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle .....	140
10.4	Temperaturverteilung über die Stromdichte .....	141
10.5	Auswahl des Kühlkonzeptes .....	143
11	Zusammenfassung.....	145
	Literatur .....	149
	Nomenklatur .....	160
	Abbildungsverzeichnis .....	163
	Tabellenverzeichnis .....	168
	Anhang .....	170
	Anhang zu Kapitel 3 .....	170
	Anhang zu Kapitel 5 .....	173
	Anhang zu Kapitel 6 .....	175
	Anhang zu Kapitel 7 .....	179
	Anhang zu Kapitel 8 .....	182
	Anhang zu Kapitel 9 .....	184





# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation und Zielsetzung

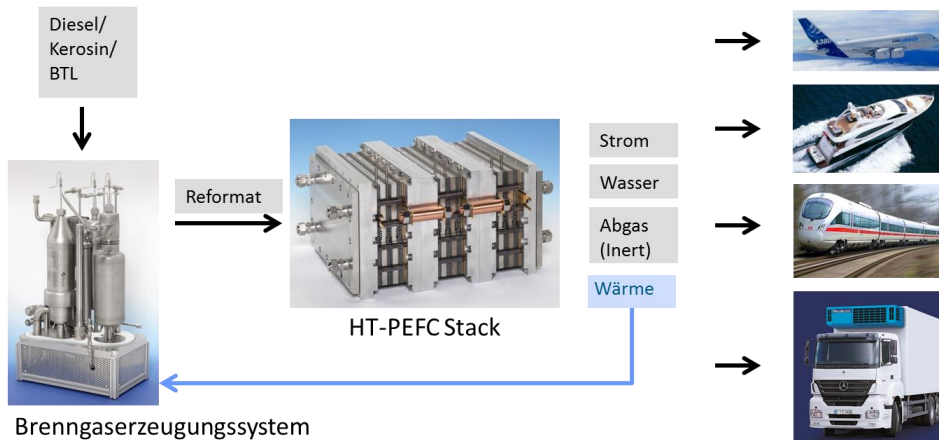
Brennstoffzellen ermöglichen eine effiziente Energiewandlung im Vergleich zu konventionell eingesetzten Technologien, wie beispielsweise Verbrennungsmotoren oder Gasturbinen [1]. Dies gilt insbesondere für kleine Anlagen, da die Effizienz der Brennstoffzelle nahezu unabhängig von der Leistungsklasse des Systems ist. In einer Brennstoffzelle kann die chemische Energie eines Brennstoffes direkt, ohne die üblichen Zwischenschritte der Wärmeerzeugung und anschließenden Umwandlung in mechanische Energie, in elektrische Energie umgewandelt werden [2].

Neben dem stationären Einsatz steht vor allem die mobile Anwendung im Fokus. Der für mobile Anwendungen am weitesten entwickelte Brennstoffzellentyp ist die Niedertemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (Low Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cell, LT-PEFC) [3, 4]. Die LT-PEFC ist aufgrund der hohen volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte vor allem für den Automobilbereich eine vielversprechende Alternative zu herkömmlichen Verbrennungsmotoren, wenn der Wasserstoff im Fahrzeug gespeichert wird [5-7]. Bei vielen Anwendungen wie beispielsweise schweren LKWs werden auch in Zukunft flüssige Energieträger wie Kerosin, Diesel und BTL-Kraftstoffe (Biomass to Liquid) eingesetzt. Diese können nicht direkt in der Brennstoffzelle in elektrische Energie umgewandelt werden. Um diese flüssigen Kraftstoffe in ein wasserstoffreiches Gas (Reformat) umzuwandeln, wird ein Brenngaserzeugungssystem benötigt. Das erzeugte Reformat enthält neben Wasserstoff vor allem  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  aber auch  $\text{CO}$  [8]. Das  $\text{CO}$  ist in der LT-PEFC ein Katalysatorgift, da es auf der Platinoberfläche adsorbiert wird und somit die elektrochemisch aktive Katalysatoroberfläche sowie die Leistung der Brennstoffzelle reduziert [9]. Daraus ergeben sich hohe Anforderungen an die Reinheit des Reaktandengases ( $< 20 \text{ ppm CO}$ ) [10, 11].

Als Alternative bietet sich die auf Polybenzimidazol-Membranen basierende Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC) an. Zur Protonenleitung kommt in der HT-PEFC Phosphorsäure als Elektrolyt zum Einsatz. Im Gegensatz zur LT-PEFC benötigt die HT-PEFC zur Protonenleitung daher kein zusätzliches flüssiges Wasser [12, 13]. Es muss sogar vermieden werden, um den Elektrolyten nicht aus der Zelle auszutragen. Die Betriebstemperatur liegt daher über  $120 \text{ }^\circ\text{C}$  und ist aus Gründen der Festigkeitsgrenzen verwendeter Materialien und Lebensdauern auf maximal  $180 \text{ }^\circ\text{C}$  beschränkt [14, 15]. Aufgrund der erhöhten Betriebstemperatur ist die  $\text{CO}$ -Toleranz mit 1 % deutlich höher als bei der LT-PEFC [1, 10, 16, 17]. Damit ist eine aufwändige  $\text{CO}$ -Feinreinigung des Reformats nicht notwendig [18]. Weitere Vorteile der erhöhten Betriebstemperatur der HT-PEFC gegenüber der LT-PEFC sind ein vereinfachtes Wassermanagement, da das Produktwasser nur einphasig vorliegt, und ein vereinfachtes Kühlsystem [10].

Ein typischer Anwendungsbereich ist die Bordstromerzeugung in mobilen Anwendungen. In Abbildung 1-1 sind die Kombination der Brennstoffzelle mit dem Brenngaserzeugungssystem und potentielle Anwendungen plakativ dargestellt. Die neben dem Strom erzeugte

Wärme kann aufgrund des hohen Temperaturniveaus in dem System weiterverwendet werden. Beispielsweise könnte, wie in Abbildung 1-1 dargestellt, die Wärme im Brenngaserzeugungssystem verwendet werden [18].



**Abbildung 1-1: Kombination der Brennstoffzelle mit dem Brenngaserzeugungssystem und potentielle Anwendungen**

Die in der HT-PEFC erzeugte Wärme muss mit Hilfe eines Kühlsystems abgeführt werden und kann dem System oder der Anwendung zugeführt werden. Das Kühlsystem wird außerdem benötigt, um einen Betrieb innerhalb des Temperaturbereichs von 120 bis 180 °C bei einer gewählten Betriebstemperatur zu gewährleisten. Dies beinhaltet auch das Aufwärmen auf Betriebstemperatur von mindestens 120 °C, da es unterhalb dieser Grenze lokal zur Bildung von flüssigem Wasser kommen kann, was zu einem erhöhten Austrag des Elektrolyten führt [19]. Folglich wird für die HT-PEFC nicht nur ein reines Kühlsystem, sondern ein Temperiersystem benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit wird der Terminus Kühlung (Kühlsysteme, Kühlkonzepte und Kühlmethoden) verwendet. Dies schließt neben der Kühlung auch das Aufheizen auf Betriebstemperatur ein. Falls eine Wärmezufuhr mit dem untersuchten Kühlkonzept nicht möglich ist wird dies explizit angemerkt. Hauptaufgabe des Kühlsystems ist, den Betrieb im spezifischen Temperaturbereich sicherzustellen. Zusätzlich sollte die Abwärme der Brennstoffzelle effizient im System oder der Anwendung verwendet werden, um den Systemwirkungsgrad zu erhöhen.

Die Aufgabe der Kühlung ist es, einen Betrieb innerhalb des vorgegebenen Temperaturbereichs zu gewährleisten. Des Weiteren muss das Kühlsystem eine homogene Temperaturverteilung auf der elektrochemisch aktiven Fläche gewährleisten, um Hot- oder Coldspots auf der MEA zu vermeiden [20, 21]. Die Homogenisierung der Temperaturverteilung über der aktiven Fläche erhöht die Langzeitstabilität der HT-PEFC [22, p.118]. Die Betriebstemperatur beeinflusst die theoretisch maximal erreichbare Spannung bei der die Brennstoffzelle betrieben werden kann. Höhere Temperaturen führen zu niedrigeren theoretisch erreichbaren Spannungen und damit zu niedrigeren Wirkungsgraden [1]. Allerdings erhöhen höhere Temperaturen die elektrochemische Aktivität der Elektrode,

was wiederum den Wirkungsgrad erhöht. Wie in der Literatur gezeigt wurde [23-25], ist eine Erhöhung der Leistung bei höheren Temperaturen zu erwarten.

Gegenstand dieser Arbeit ist eine Untersuchung verschiedener möglicher Kühlkonzepte hinsichtlich ihrer Eignung zum Einsatz in der HT-PEFC, vor allem im Hinblick auf die Verwendung als Bordstromerzeugungseinheit im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem. Die avisierte Leistung soll im unteren Kilowatt-Bereich liegen, das heißt, das Kühlsystem muss so ausgelegt werden, dass eine HT-PEFC für die Leistungsklasse 1 bis 10 kW<sub>el</sub> innerhalb der Spezifikationen robust und dauerhaft betrieben werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit werden die möglichen Kühlmethoden dargestellt.

## 1.2 Vorgehensweise und Gliederung

Im Bereich der LT-PEFC wurden bereits umfangreiche Untersuchungen zu Kühlkonzepten durchgeführt [26]. Im Bereich der HT-PEFC sind einzelne Kühlkonzepte von verschiedenen Forschungsgruppen untersucht worden, jedoch nicht mit dem Fokus eines umfassenden Vergleichs bezogen auf die Fragestellungen:

1. Ist das Kühlkonzept für den Einsatz in der HT-PEFC geeignet?
2. Ist eine ausreichende Kühlung für einen Stack der kW-Klasse gewährleistet?
3. Welches Kühlkonzept eignet sich für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit?

Um diese Kriterien in einem ersten Schritt zu beurteilen, erfolgt eine rechnerische Auslegung der betrachteten Kühlkonzepte. Zur weiteren Verifikation der analytischen Abschätzungen werden gegebenenfalls experimentelle Untersuchungen anhand von Shortstacks mit einer aktiven Fläche von 200 cm<sup>2</sup> durchgeführt. Zu beachten ist neben der ausreichenden Kühlleistung auch das Verhalten bei einem dynamischen Betrieb. Das Aufheizen (Kaltstart) und die Kühlung verschiedener Betriebspunkte soll möglich sein. Daraus ergibt sich für die Arbeit folgende Gliederung:

- Kapitel 2 befasst sich mit dem Stand der Technik. Nach einer Einteilung der möglichen Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks wird eine Literaturübersicht über bestehende Kühlkonzepte vorgestellt.
- Kapitel 3 behandelt die für diese Arbeit notwendigen Grundlagen. Diese werden benötigt, um Berechnungen zur Auslegung der Temperierkonzepte durchzuführen.
- Im Kapitel 4 wird auf die verwendete Messtechnik eingegangen.
- In den Kapitel 5, 6 und 7 werden die Kühlkonzepte ausgelegt und untersucht, um in Kapitel 8 einen Vergleich und eine Bewertung nach den oben aufgelisteten Fragestellungen durchführen zu können.
- Das am geeignetsten identifizierte Kühlkonzept wird daraufhin in Kapitel 9 anhand eines Stacks der kW-Klasse umgesetzt.
- In Kapitel 10 erfolgt eine abschließende Diskussion der in dieser Arbeit untersuchten Kühlkonzepte.
- Kapitel 11 schließt die Arbeit mit einer Zusammenfassung.



## 2 Stand der Technik

Bisher gibt es nach heutigem Stand keine umfassend dokumentierte experimentelle Untersuchung zu Kühlkonzepten für die HT-PEFC im Leistungsbereich von mehr als 1 kW<sub>el</sub>. Reddy et al. [27] simulieren interne aktive Kühlkonzepte mit den Wärmeträgermedien Luft, Wasser und Wärmeträgerflüssigkeit anhand eines 1 kW<sub>el</sub> HT-PEFC-Stackmodells. Firat et al. [28] simulieren eine externe Heatpipe-unterstützte passive Kühlung. Experimentelle Untersuchungen einer Luftkühlung mit erhöhter Kathodenluft werden von Andreasen et al. durchgeführt [19, 29, 30]. Scholta et al. untersuchen aktive, extern mit Wärmeträgerflüssigkeit gekühlte Stacks und vergleichen die Ergebnisse mit intern gekühlten Stacks [31, 32]. Ein Stack der kW-Klasse mit interner Kühlung, die Wasser als Wärmeträgermedium verwendet, wird von Song et al. experimentell untersucht [33]. Zuliani und Taccani simulieren den Einfluss der Flowfieldgeometrie auf die Temperaturverteilung in einer HT-PEFC [34].

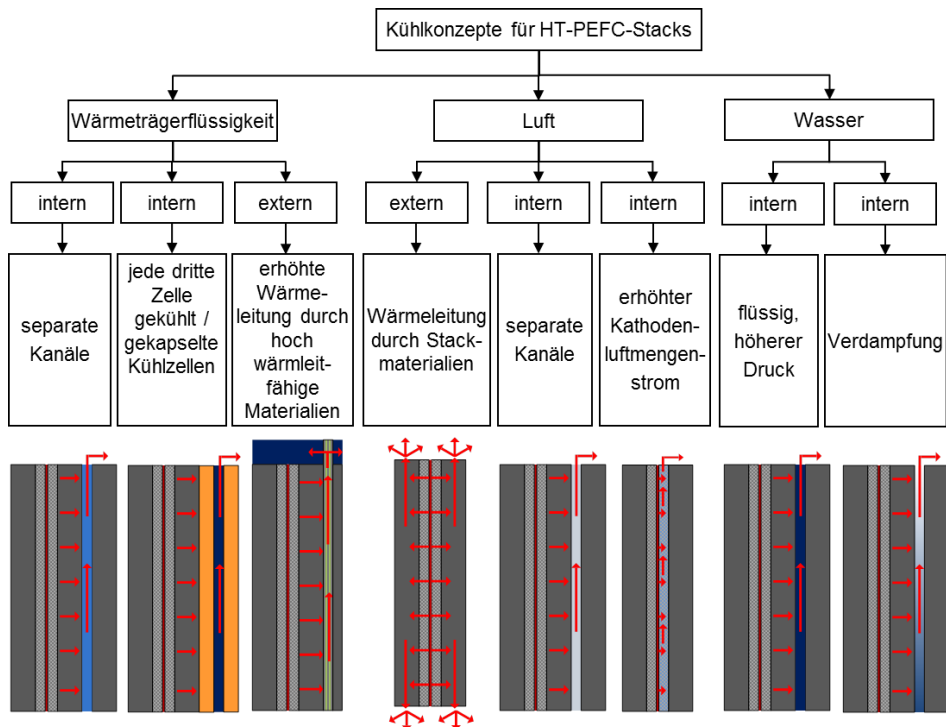
Weitere systematische Untersuchungen von Kühlkonzepten wurden ebenfalls anhand anderer Brennstoffzellentypen durchgeführt. Die in diesen Arbeiten präsentierten Untersuchungen lassen sich jedoch nicht eins zu eins auf die HT-PEFC übertragen. Je nach Brennstoffzellentyp besteht jedoch die Möglichkeit, Kühlkonzepte für die HT-PEFC zu adaptieren. Der wichtigste Unterschied der Brennstoffzellentypen in Bezug auf die Kühlkonzepte ist die Betriebstemperatur. Bei der HT-PEFC kann der optimale Betriebstemperaturbereich je nach Reformatzusammensetzung und eingesetzter Membran-Elektroden-Einheit (Membrane Electrode Assembly, MEA) zwischen 120 und 200 °C variieren. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Reformatzusammensetzung und MEAs verringert sich bei Betriebstemperaturen von unter 160 °C die Leistung im Reformatbetrieb deutlich [22]. Aufgrund der thermischen Stabilität der eingesetzten Materialien (z.B. Bipolarplatten) ist die Betriebstemperatur auf 180 °C begrenzt. Hinzu kommt, dass bei Temperaturen über 180 °C die Alterungsrate der MEA wesentlich erhöht ist [10, 22, 35-37]. Der Temperaturgradient sollte daher in den hier untersuchten HT-PEFC-Stacks 20 K nicht überschreiten.

Im Gegensatz zur HT-PEFC ist in der LT-PEFC das Wärmemanagement an das Wassermanagement in der Membran-Elektroden-Einheit (MEA) gekoppelt und hat einen direkten Einfluss auf die Leistung der LT-PEFC [20, 38]. Die Performance der LT-PEFC ist abhängig von der Wassermenge in der MEA [39]. Aufgrund der notwendigen Membranbefeuchtung ist die Kühlung der LT-PEFC vor allem auf diesen Aspekt ausgelegt [40-44]. Temperaturgradienten innerhalb der aktiven MEA-Fläche und von MEA zu MEA führen zu inhomogenen Stromdichteverteilungen [45-47]. Da in der HT-PEFC kein flüssiges Wasser und deshalb keine zusätzliche externe Befeuchtung notwendig ist, liegt die Toleranz gegenüber Temperaturdifferenzen höher. Untersuchungen haben allerdings gezeigt, dass ein hoher Temperaturgradient in der MEA zu erhöhter Alterung führen kann [22, p.115]. Im Bereich der LT-PEFC sind Übersichtsarbeiten zu Kühlkonzepten verfasst worden [1, 26]. Zhang et al. [26] geben eine Übersicht über veröffentlichte Arbeiten und Patente zu Kühlkonzepten, die von verschiedenen Gruppen sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht worden sind. Faghri et al. [1] betrachten die theoretischen

Grundlagen, die für eine Simulation verschiedener Kühltechniken bei der LT-PEFC notwendig sind.

## 2.1 Übersicht Kühlkonzepte

Um einen ersten Überblick über die prinzipiell für den Einsatz in einer HT-PEFC möglichen Kühlkonzepte zu bekommen, sind diese in Abbildung 2-1 strukturiert dargestellt. Die Kühlmethoden in der HT-PEFC müssen in der Lage sein, die erzeugte Wärme in dem Maße abzuführen, dass eine möglichst konstante Betriebstemperatur zwischen 120 und 180 °C über den gesamten Betriebsbereich einer HT-PEFC dauerhaft gewährleistet wird.



**Abbildung 2-1: Übersicht der Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks**

Prinzipiell eignen sich drei Wärmeträgermedien zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks. Dies sind als gasförmiger Wärmeträger Luft, Wärmeträgerflüssigkeit stellvertretend für alle im Temperaturbereich der HT-PEFC flüssigen Wärmeträgermedien und Wasser, das sich sowohl flüssig als auch im Übergang zur dampfförmigen Phase zur Kühlung eignet. Für die hier beschriebenen Kühlkonzepte wird außerdem zwischen interner und externer Kühlung unterschieden. Bei der internen Kühlung strömt ein flüssiger oder gasförmiger Wärmeträger durch den Brennstoffzellenstack hindurch und nimmt mit Hilfe der erzwungenen Konvektion die in den MEAs erzeugte Wärme auf oder gibt Wärme an diese ab. Der Wärmetransport zwischen den MEAs und den Strömungsstrukturen des

Kühlmediums erfolgt aufgrund der durch die Temperaturdifferenz erzeugten Wärmeleitung. Bei der externen Kühlung erfolgt der Energietransport mittels Wärmeleitung an die Oberfläche des Stacks wo der Wärmeübergang an das Wärmeträgermedium stattfindet

## 2.2 Literaturrecherche

Dieser Abschnitt gibt einen Überblick über die bisher in der Literatur beschriebenen möglichen Kühlkonzepte. Dabei erfolgt die Einteilung nach dem in Abbildung 2-1 gezeigten Prinzip.

### 2.2.1 Luftkühlung

Eine vor allem im LT-PEFC-Bereich häufig eingesetzte Kühlmethode ist die erzwungene konvektive Luftkühlung mit einem erhöhten Kathodenluftüberschuss [1]. Die Verwendung von Umgebungsluft bringt den Vorteil, dass die Gefahr einer MEA-Vergiftung bei Leckagen ausgeschlossen werden kann [48]. Bei der LT-PEFC kann der Luftüberschuss jedoch nicht beliebig groß sein, da die Gefahr einer Austrocknung der Membran besteht [1]. Auch für die HT-PEFC gibt es Stacks, die durch einen erhöhten Kathodenluftüberschuss gekühlt werden [29, 30, 49-51]. Diese Stacks weisen meist eine kleine aktive MEA-Fläche auf ( $< 50 \text{ cm}^2$ ), so dass für Stackleistungen von  $1 \text{ kW}_{\text{el}}$  bis zu 65 Zellen notwendig sind [29]. Als problematisch hat sich der hohe Druckverlust in den Flowfield-Kanälen durch die erforderlichen Luftmassenströme erwiesen. Simulationen einer solchen Luftkühlung anhand eines  $1 \text{ kW}$  HT-PEFC-Stacks haben gezeigt, dass eine Kathodenstöchiometrie von  $\lambda_K \approx 9,6$  erforderlich ist [52]. Dies führt zu einem Temperaturunterschied über die Zellfläche von  $\pm 25 \text{ K}$  bezogen auf den Temperaturmittelwert von  $171,3 \text{ °C}$ . Die erzeugte Leistung verringerte sich um  $15 \%$ . Zusätzlich steigt der mit dem steigenden Volumenstrom korrespondierende parasitäre Leistungsbedarf.

Eine interne Kühlung mit Luft kann auch durch einen erzwungenen konvektiven Wärmeübergang über separate Luftkanäle erfolgen [34, 52-56]. Stacks mit diesem Kühlkonzept wurden vor allem mit Hilfe von Simulationen untersucht [52, 56]. Eine Simulation eines  $1 \text{ kW}_{\text{el}}$  HT-PEFC-Stacks mit einer aktiven MEA-Fläche von  $50 \text{ cm}^2$  und 100 Zellen hat gezeigt, dass die zur Luftkühlung verwendeten Lüfter zu einem parasitären Leistungsverlust von  $18\%$  der Stackleistung führen [56].

Generelle Vorteile der Luft- im Vergleich zur Flüssigkühlung sind der geringe Dichtungsaufwand und der einfachere Systemaufbau [57]. Bei der Verwendung von Umgebungsluft muss der HT-PEFC-Stack in der Startphase zusätzlich beheizt werden, um die untere Betriebstemperaturgrenze von  $120 \text{ °C}$  zu erreichen [29, 51]. Ein Aufheizen kann entweder elektrisch mittels Heizpatronen oder Heizpads erfolgen oder über einen durch Verbrennung oder elektrische Heizspiralen aufgewärmten Gasstrom. Hinzu kommt, dass eine thermische Auskopplung der im Stack erzeugten Wärme und die Verwendung dieser Wärme in anderen Bereichen ineffizienter ist als dies beispielsweise mit Wärmeträgerflüssigkeit oder Wasser der Fall ist [48]. Grund ist die geringe Wärmetransportkapazität von Luft. Von der LT-PEFC ist bekannt, dass eine Luftkühlung



von Stacks mit einer Leistung von mehr als 5 kW<sub>el</sub> weder ausreichend noch vorteilhaft ist [21, 58, 59]. Für Stacks dieser Leistungsklasse bietet sich eine Flüssigkeitskühlung (Wasser oder Wärmeträgerflüssigkeit) an, die durch extra dafür vorgesehene Kühlkanäle innerhalb der Brennstoffzelle strömt.

### 2.2.2 Wärmeträgerflüssigkeitskühlung

Wärmeträgerflüssigkeit ist aufgrund des Temperaturniveaus der HT-PEFC das überwiegend eingesetzte flüssige Wärmeträgermedium, da es im gesamten Betriebstemperaturbereich zu keinem Phasenwechsel kommt [27, 60]. Prinzipiell lassen sich Wärmeträgerflüssigkeiten auf Mineralölbasis oder synthetische Fluide verwenden. Die aus Erdöl erzeugten Mineralöle sind bis zu Temperaturen von 280 °C einsetzbar, die gezielt für die Wärmeübertragung hergestellten synthetischen Fluide bis maximal 400 °C.

Der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung wird mit Hilfe von zusätzlichen Strömungsstrukturen realisiert, die entweder in die Bipolarplatten integriert sind oder sich in gekapselten Kühlzellen befinden [26, 32, 48, 61-65]. Wärmeträgerflüssigkeit hat den Nachteil, dass es im Falle von Leckagen zu MEA-Schädigungen kommen kann. Aus diesem Grund ist vor allem bei den in die Bipolarplatten integrierten Flowfields ein aufwändiges Dichtungskonzept erforderlich [48, 53]. Ein Vorteil der Kühlung mit Wärmeträgerflüssigkeit ist ein effektives und einfaches Aufheizen des Stacks [66] und die thermische Integration in das System [48]. Simulationen eines 1 kW<sub>el</sub> HT-PEFC-Stacks zeigten, dass die Temperaturdifferenz über der aktiven Zellfläche im Stack abhängig von den Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit auf unter 10 K beschränkt werden kann [27].

### 2.2.3 Wasserkühlung

Eine Kühlung ist mit deionisiertem Wasser als Wärmeträgermedium möglich. Wasser weist im Vergleich zu Luft und zu Wärmeträgerflüssigkeit eine höhere Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit auf [67]. Im Bereich der LT-PEFC ist Wasser das vorwiegend eingesetzte flüssige Kühlmedium [68, 69]. Das flüssige Wasser strömt dabei durch separate Kühlkanäle. Alternativ kann auch eine Kühlung durch Verdampfung von Wasser ermöglicht werden. Aufgrund der bei der LT-PEFC ohnehin notwendigen Membranbefeuchtung mit flüssigem Wasser kann zusätzliches Wasser in die Reaktandenkanäle geleitet werden. Dies wird entweder mit Hilfe poröser Strukturen über die Bipolarplatten eingebracht [70-74], direkt in die Reaktandenkanäle eingespritzt [69] oder es werden befeuchtete Gase verwendet [26].

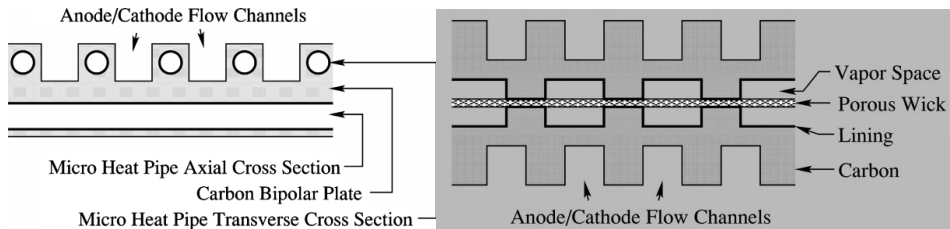
Bei den Betriebstemperaturen in der HT-PEFC ist bei der Kühlung mit Wasser zu beachten, dass es zu Verdampfung des flüssigen Wassers kommt oder der Wasserkreislauf nur unter hohem Druck betrieben werden kann. Bisher wurde für einen HT-PEFC-Stack nur in einem Fall von einer Wasserkühlung berichtet [33, 75]. Bei diesem System wurde in separaten Kühlplatten unter Druck Wasser verdampft. Die Auslegung einer Kühlung, die den endothermen Phasenübergang des Wassers ausnutzt, bedarf einer komplexen Regelung. Schwierig ist die Regelung der Verdampfungsrate im dynamischen Betrieb der HT-PEFC. Außerdem ist die Instabilität des in zwei Phasen vorliegenden Wassers zu berücksichtigen [26]. Vorteile bei einer Flüssigkeitskühlung mit

Phasenwechsel gegenüber der ohne Phasenwechsel ist die Erlangung einer homogenen Temperaturverteilung auf der MEA durch Ausnutzung der latenten Wärme [26]. Zusätzlich kann der Massenstrom reduziert werden. Dadurch muss eine geringere Wassermenge aufgewärmt werden, wodurch ein schneller und zuverlässiger Kaltstart des Brennstoffzellensystems möglich wird [72].

#### 2.2.4 Externe Kühlung

Eine weitere Möglichkeit der Kühlung ist die externe Kühlung. Dabei erfolgt der Energietransport mittels Wärmeleitung an die Oberfläche des Stacks. Dort erfolgt ein Wärmeübergang entweder mittels erzwungener Konvektion an ein vorbeiströmendes Wärmeträgermedium (z.B. Luft, Wärmeträgerflüssigkeit) oder mittels freier Konvektion und Strahlung an die Umgebungsluft. Der Wärmeaustrag durch freie Konvektion und Abstrahlung an der Oberfläche des Brennstoffzellenstacks entspräche einer reinen passiven Kühlung. Passive Kühlung bedeutet, dass ohne zusätzliche Energieaufwendung eine Kühlung des Brennstoffzellenstacks erreicht wird. Im Gegensatz zur aktiven Kühlung ist jedoch kein Aufheizen des Stacks über das Kühlsystem im Anfahrbetrieb möglich [76]. Die Effizienz der Kühlung kann noch durch eine zusätzliche Oberflächenvergrößerung (z.B. Kühlrippen oder Kühlplatten) gesteigert werden [77]. Anhand einer LT-PEFC mit  $100 \text{ cm}^2$  aktiver Fläche wurde gezeigt, dass durch den Einsatz hochwärmeleitfähigen Graphits (z.B. Pyrolytic Graphite Sheet [78]) die Temperaturverteilung über die aktive Fläche homogenisiert und damit die maximale Leistung um 15 % gesteigert werden kann [79]. Eine passive Kühlung ist durch verschiedene Parameter wie beispielsweise die Baugröße des Stacks, die Anzahl der Zellen oder die Menge der erzeugten Wärme limitiert [79-81]. Ohne den Einsatz von zusätzlichen hoch-wärmeleitfähigen Materialien ( $> 1000 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) zur Temperaturhomogenisierung ist die Wärmeübertragungsdistanz auf unter 10 cm limitiert [77]. Der Einsatz von Heatpipes zur Verbesserung des Wärmetransports und Temperaturhomogenisierung über der aktiven Fläche ist eine Möglichkeit, die passive Kühlung auch bei Stacks mit größeren aktiven Flächen zu verwenden [77].

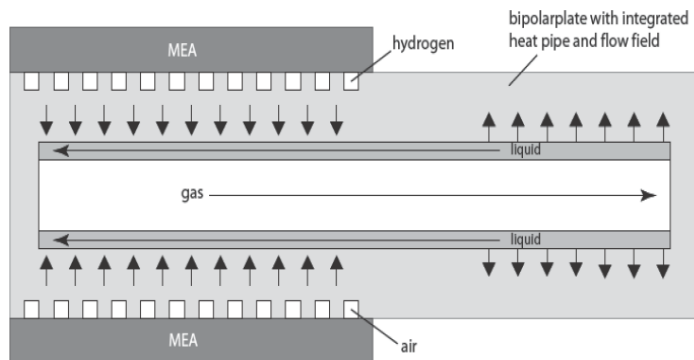
In der Literatur sind bereits verschiedene Ansätze zum Einsatz von Heatpipes in Brennstoffzellen beschrieben. Häufig sind es rein theoretische Ansätze oder Modellierungen und Simulationen [28]. Grundsätzlich stellt die Heatpipe einen passiven Wärmeübertrager dar, der allerdings eine sehr hohe Wärmeleitfähigkeit aufweist. Ein Vorteil der sehr hohen Wärmeleitfähigkeit der eingesetzten Heatpipes ist, dass eine Homogenisierung der ungleichverteilten Wärmeproduktion stattfindet. Faghri und Guo [82] verwenden Heatpipes in zwei verschiedenen Ausführungen, um den Wärmeaustrag aus einem DMFC-Stack zu verbessern. Fertigungstechnische Herausforderungen bei der Integration der Heatpipes in die Stegstruktur der Bipolarplatten (vgl. Abbildung 2-2, links) haben bisher einen Einsatz in einer realen Brennstoffzelle verhindert [82]. Der zweite Vorschlag von Faghri und Guo ist die Integration einer flachen Heatpipeplatte (vgl. Abbildung 2-2, rechts)



**Abbildung 2-2: In die Stegstruktur der Bipolarplatten integrierte Heatpipes [82, 83] (links) und in die Bipolarplatte integrierte flache Heatpipe [82, 84] (rechts)**

Insgesamt kommen Faghri und Guo zu dem Schluss, dass sich, vor dem Hintergrund der Lösbarkeit der technischen Umsetzung, Heatpipes hervorragend eignen, um die Temperaturverteilung in einem DMFC-Stack zu homogenisieren.

Niemasz et al. umgehen das Problem der fertigungstechnischen Realisierbarkeit, indem sie die Heatpipes und die Bipolarplatten aus einem Material (Silikon-Pyrex-Verbund [85]) herstellen [86]. Diese funktionsintegrierte Heatpipe-Bipolarplattenanordnung wird dann in einer HT-PEFC zur Homogenisierung der Temperaturverteilung verwendet (vgl. Abbildung 2-3).



**Abbildung 2-3: In die Bipolarplatte integrierte Heatpipe aus Silikon [86]**

Der Vorteil von Silikon-Pyrex ist seine gute thermische und chemische Beständigkeit gegenüber den Bedingungen in der HT-PEFC. Als nachteilig hat sich jedoch herausgestellt, dass keine vergleichbaren Stromdichten wie mit graphitischen Materialien erzielt werden können. Der Grund dafür ist die schlechtere elektrische Leitfähigkeit des Silikon-Pyrex-Verbunds gegenüber Graphit. Es wurden keine Angaben zu den Leistungsdaten der Vergleichsmessung gemacht.

Burke vergleicht Heatpipes mit anderen hoch-wärmeleitfähigen Materialien, die zur passiven Kühlung von LT-PEFCs verwendet werden, unter dem Gesichtspunkt eines Einsatzes in der Raumfahrt [77]. Die LT-PEFCs werden dabei mit Hilfe von Kühlplatten aus hoch-wärmeleitfähigen Materialien, die die entstehende Wärme an eine externe

Wärmesenke weiterleiten, gekühlt. Der Fokus der Untersuchungen liegt auf einem möglichst geringen Gewicht, einer geringen Systemkomplexität und einer geringen parasitären Leistungsaufnahme dieses Kühlkonzeptes. Das Problem dieser passiven Kühlzellen ist, dass bei einer ausreichenden Wärmeübertragung über lange Distanzen ( $> 5$  cm) die Kühlplattendicke und damit auch das Gewicht deutlich zunehmen. Selbst das am besten wärmeleitende Material Diamant mit einer Wärmeleitfähigkeit von  $2300 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  eignet sich unter den Anforderungen nur für Wärmeübertragungsdistanzen von 8 cm. Burke kommt zu dem Schluss, dass sich deshalb nur Heatpipes für die Wärmübertragung über Distanzen von  $> 10$  cm eignen.

Vasiliev beschreibt in seiner Arbeit verschiedene Heatpipeformen für den Einsatz über alle Leistungsbereiche von Brennstoffzellen [87]. In dieser Übersicht stehen vor allem die unterschiedlichen Bauformen von Heatpipes im Vordergrund. Die Arbeit gibt Empfehlungen für eine möglichst optimale Heatpipe-Auswahl für den Einsatz in verschiedenen Leistungsbereichen.

Firat simuliert einen passiv gekühlten, 24-zelligen HT-PEFC-Stack mit einer aktiven Fläche von  $300 \text{ cm}^2$  [28]. Dabei werden entweder 4 oder 6 Heatpipes pro Zelle zur Wärmeabfuhr integriert. Die Heatpipeenden sind zur Wärmeabfuhr über die Stackoberfläche verlängert. Bei dem Konzept mit 4 Heatpipes pro Zelle beträgt die maximale Stacktemperatur  $180^\circ\text{C}$ . Allerdings stellt sich eine maximale Temperaturdifferenz von 30 K ein. Das Konzept mit 6 Heatpipes weist insgesamt niedrigere Betriebstemperaturen und niedrigere Temperaturdifferenzen auf.

Ein weiteres Kühlkonzept für die HT-PEFC ist die externe aktive Kühlung. Prinzipiell kann durch erzwungene Konvektion mittels eines extern strömenden Wärmeträgermediums wie beispielsweise Wärmeträgerflüssigkeit oder Wasser [31] bzw. Luft [32, 81] die Wärme effektiver abgeführt werden als dies bei der rein passiven Kühlung der Fall ist. Diese Art der Kühlung bietet den Vorteil, dass eine Abdichtung im Inneren der Zelle entfällt und außerdem eine hohe Temperaturdifferenz ( $> 60$  K) zwischen der Betriebstemperatur und dem Wärmeträgermedium bestehen kann [31]. Allgemein beschränkt eine externe Kühlung jedoch den maximalen Durchmesser der Zellen. Die Untersuchungen von Scholta et al. zeigen, dass bei einer Eintrittstemperatur des extern strömenden Kühlmediums von  $100^\circ\text{C}$  zwar eine MEA-Temperatur von  $160^\circ\text{C}$  erreicht werden kann, es aber zu einem Temperaturgradienten von 21 K über der aktiven Fläche ( $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ ) kommt. Eine Verbesserung der Wärmeleitung an die Oberfläche lässt sich durch den Einsatz von hoch-wärmeleitfähigen Materialien wie beispielsweise Kupfer oder durch Heatpipes realisieren [77].



### 3 Grundlagen zur Auslegung der Kühlkonzepte

In diesem Kapitel werden die Grundlagen zur Auslegung der Kühlkonzepte behandelt. Eine Brennstoffzelle erzeugt elektrische Energie in einem Wirkungsgradbereich von 40 - 50 % bezogen auf den oberen Heizwert des Wasserstoffs [88]. Bei einem Wirkungsgrad von 50 % würde bei einer Stromerzeugung von 1 kW ebenfalls 1 kW thermische Energie generiert [1]. Daher wird zuerst die Wärmeerzeugung in der HT-PEFC betrachtet. Diese Wärme muss durch Wärmeleitung, Konvektion, Strahlung oder Phasenwechsel abgeführt werden. Die Grundlagen der Wärmeabfuhr werden in Kapitel 3.2 vorgestellt. Anschließend wird die Berechnungsmethode auf Basis der Energiebilanzgleichung eingeführt, mit der sich der Anteil der durch das Kühlsystem abzuführenden Wärme bestimmen lässt. Nachfolgend werden für die interne Kühlung die Grundlagen zur Berechnung des Wärmeübergangs an die Kanäle eingeführt. Für die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung werden abschließend die Grundlagen zu Heatpipes erläutert.

#### 3.1 Wärmeerzeugung in der HT-PEFC

In der HT-PEFC reagieren in einer elektrochemischen Reaktion Wasserstoff und Sauerstoff miteinander. Bei einer vollständigen Verbrennung des Wasserstoffs (Knallgasreaktion) würde die gesamte Reaktionsenthalpie als Wärme frei. Die so erzeugte Wärme wird auch als oberer Heizwert bezeichnet und stellt den bei einer Verbrennung von Wasserstoff theoretisch maximal erreichbaren Betrag an erzeugter Wärme bei Standardbedingungen ( $T=25\text{ °C}$  und  $p=1\text{ bar}$ ) und flüssigen Reaktionsprodukten dar.

$$\Delta_R H = (h_l)_{H_2O} - (h_g)_{H_2} - \frac{1}{2}(h_g)_{O_2} = -286 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \quad (3-1)$$

Aus dem Heizwert lässt sich die Heizwertspannung ( $E_0^H$ ) berechnen.

$$E_0^H = -\frac{\Delta_R H}{zF} \quad (3-2)$$

Die Anzahl der an der Reaktion beteiligten Elektronen ( $z$ ) beträgt 2 und die Faradaykonstante ( $F$ ) beträgt  $96485\text{ C mol}^{-1}$ . Somit ergibt sich für die Heizwertspannung  $E_0^H=1,48\text{ V}$ .

In der HT-PEFC sind die Gasräume durch eine gasundurchlässige Membran aus Polybenzimidazol (PBI) getrennt. Durch die Dotierung mit konzentrierter Phosphorsäure besitzt die PBI-Membran die Eigenschaft protonenleitend zu sein. Elektrisch sind die Membran und die Phosphorsäure Isolatoren. Die Reaktion von Wasserstoff und Sauerstoff finden deshalb getrennt an der Anode (3-3) und Kathode (3-4) statt.





Im Gegensatz zur vollständigen Verbrennung wird in einer Brennstoffzelle neben der thermischen auch elektrische Energie erzeugt. Die maximal erzeugbare elektrische Energie unter Standardbedingungen entspricht der Gibbs-Enthalpie ( $\Delta G = -237 \text{ kJ mol}^{-1}$ ) [89, p.28]. Aus der Gibbs-Enthalpie lässt sich das Standardpotential berechnen, welches die bei Standardbedingungen theoretisch maximal erreichbare Spannung ( $E^0$ ) darstellt.

$$E^0 = -\frac{\Delta G}{zF} \quad (3-5)$$

Bei flüssigem Wasser als Reaktionsprodukt beträgt das Standardpotential 1,229 V. Falls die Temperatur ( $T$ ) und der Druck von den Standardbedingungen abweichen, wird die Nernstspannung ( $E_N$ ) berechnet. Die Nernstspannung berücksichtigt gemäß Gleichung (3-6) die tatsächliche Temperatur ( $T$ ), den Druck und die Aktivitäten ( $a_i$ ) der Produkte und Edukte. Dabei ist  $R$  die allgemeine Gaskonstante,  $a_i$  die Aktivität und  $v_i$  der stöchiometrische Koeffizient der Reaktionsprodukte und -edukte. Die Nernstspannung ist die im Leerlauf theoretisch erreichbare Spannung der Brennstoffzelle. Die Differenz zwischen Heizwertspannung (Gleichung (3-2)) und Nernstspannung (Gleichung (3-6)) definiert die Entropieverluste und damit die Wandlung eines Teils der chemischen Energie des Brennstoffes in thermische Energie.

$$E_N = E^0 - \frac{R \cdot T}{z \cdot F} \cdot \ln \frac{\prod_i a_{i, \text{Produkte}}^{v_i}}{\prod_i a_{i, \text{Edukte}}^{v_i}} \quad (3-6)$$

Bei der Berechnung des Wirkungsgrads der Brennstoffzelle wird zwischen idealem (thermodynamischem) und realem Wirkungsgrad unterschieden. Der ideale Wirkungsgrad einer Brennstoffzelle liegt immer über dem realen Wirkungsgrad, kann aber nicht 100 % betragen. Die aus der zugeführten Energie maximal erzeugbare elektrische Energie ist durch die Gibbs-Enthalpie gegeben. Damit lässt sich der ideale Wirkungsgrad einer Brennstoffzelle nach Gleichung (3-7) als Verhältnis zwischen Gibbs-Enthalpie und oberem Heizwert berechnen.

$$\eta_{ideal} = \frac{\Delta G}{\Delta H_H^0} \quad (3-7)$$

Bei Standardbedingungen und flüssigen Reaktionsprodukten beträgt der ideale Wirkungsgrad 0,83.

Bei einem realen Betrieb liegt der Wirkungsgrad unterhalb des idealen Wirkungsgrads und lässt sich nach Gleichung (3-8) berechnen. Hierbei ist  $\eta_{Last}$  der Lastwirkungsgrad und  $\eta_{Umsatz}$  der Umsatzwirkungsgrad.

$$\eta_{real} = \eta_{ideal} \cdot \eta_{Last} \cdot \eta_{Umsatz} \quad (3-8)$$

Der Lastwirkungsgrad berücksichtigt die kinetischen Effekte in der Brennstoffzelle [90]. Wird ein Verbraucher angeschlossen, treten Aktivierungsüberspannungen auf. Aufgrund der langsamen Elektrodenkinetik sinkt die Spannung ab, da die Ladungsträger die Grenzfläche zwischen Elektrode und Elektrolyt nur mit endlicher Geschwindigkeit passieren. Im Bereich größerer Stromstärken tragen zusätzlich die Ohm'schen Verluste zum Spannungsabfall bei. Aufgrund des Widerstandes des Ionenstroms durch den Elektrolyten und des Elektronenstroms durch die Elektrode fällt die Spannung linear mit steigender Stromstärke ab. Detaillierte Informationen sind zum Beispiel in [90] zu finden. Somit lässt sich der Lastwirkungsgrad aus dem Verhältnis zwischen Klemmspannung ( $E_i$ ) und Heizwertspannung ( $E_0^H$ ) berechnen.

$$\eta_{Last} = \frac{E_i}{E_0^H} \quad (3-9)$$

Hinzu kommt noch der in der Brennstoffzelle nicht umgesetzte Wasserstoff aufgrund von überstöchiometrischer Zugabe und Nebenreaktion wie beispielsweise Wasserstoff-crossover. Der Umsatzwirkungsgrad berücksichtigt daher das Verhältnis von Wasserstoff, der zur Erzeugung von elektrischer Energie umgesetzt wurde, zu zugeführtem Wasserstoff nach Gleichung (3-10).

$$\eta_{Umsatz} = \frac{1}{\lambda} \quad (3-10)$$

Die Wärmeerzeugung in der HT-PEFC erfolgt daher vorwiegend aufgrund von:

- Entropieproduktion
- Aktivierungsüberspannungen
- Ohm'schen Verlusten
- Konzentrationsüberspannungen

Neben dem Realwirkungsgrad, der nur den Brennstoffzellenstack berücksichtigt, kann für das Gesamtsystem noch der Systemwirkungsgrad definiert werden. Dieser bezieht die im Gesamtsystem für die Peripherie (z.B. Lüfter, Pumpen, etc.) aufzuwendende elektrische Leistung mit ein.

Um die erzeugte Wärme berechnen zu können, muss die Energiebilanzgleichung (3-11) gelöst werden. Bei einer Brennstoffzelle ist zu beachten, dass sich sowohl der Massenstrom des Sauerstoffes als auch der des Wasserstoffes ändert, da es zu einer Stoffumwandlung kommt. Mit der Zustandsänderung ändert sich aber auch die innere Energie und Enthalpie der Gasströme [91, pp. 157-165].



$$\sum (\dot{H}_i)_{\text{ein}} = P_{\text{el}} + \sum (\dot{H}_i)_{\text{aus}} + \dot{Q} \quad (3-11)$$

Dabei ist Gleichung (3-12) für ein ideales Gas oder Gasgemische, (3-13) für brennbares Gas und (3-14) für Wasser zu berücksichtigen.

$$\dot{H}_i = \dot{m}_i \cdot c_{p,i} \cdot \vartheta \quad (3-12)$$

$$\dot{H}_i = \dot{m}_i \cdot (c_{p,i} \cdot \vartheta + h_{o,i}^0) \quad (3-13)$$

$$\dot{H}_{H_2O} = \dot{m}_{H_2O} \cdot (c_{p,H_2O} \cdot \vartheta + h_{H_2O,l}^0) \quad (3-14)$$

Dabei sind  $\dot{H}_i$  der Enthalpiestrom,  $\dot{m}_i$  der Massenstrom,  $c_{p,i}$  die spezifische Wärmekapazität der Komponente  $i$  und  $\vartheta$  die Temperaturdifferenz zur gewählten Bezugstemperatur ( $0^\circ\text{C} \hat{=} 273,15\text{ K}$ ). Zusätzlich muss bei brennbaren Gasen der Heizwert  $h_{o,i}^0$  und die Verdampfungsenthalpie  $h_{H_2O,l}^0$  des Wassers berücksichtigt werden. Für die Berechnung der nötigen Massenströme wird das Faraday-Gesetz nach Gleichung (3-15) verwendet.

$$Q = n_i \cdot z \cdot F \quad (3-15)$$

mit

$$m_i = n_i \cdot M_i \quad (3-16)$$

und der Ladung  $Q$

$$Q = I \cdot t \quad (3-17)$$

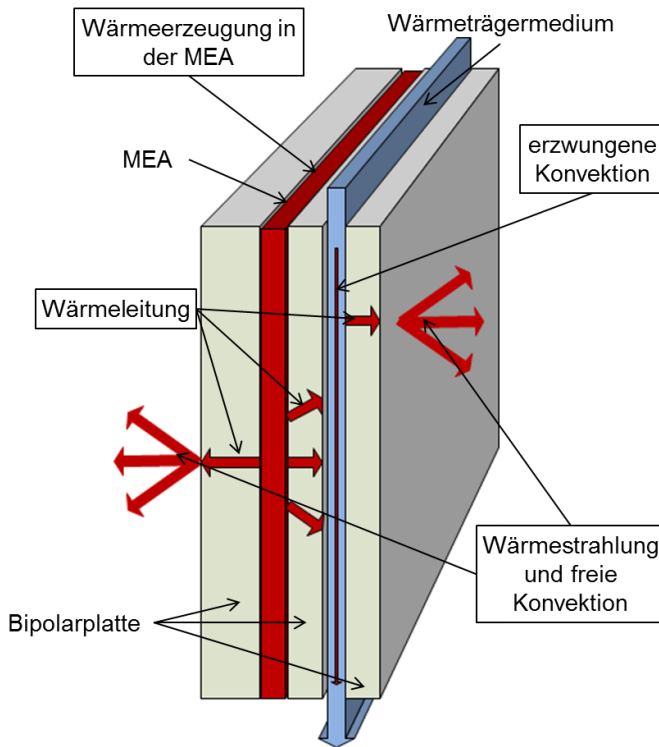
folgt

$$\dot{m}_i = \frac{m_i}{t} = \frac{M_i}{z \cdot F} \cdot I \quad (3-18)$$

Hierbei ist  $M_i$  die molare Masse und  $n_i$  die Stoffmenge der Komponente  $i$ ,  $Q$  die Ladung,  $I$  die Stromstärke und  $t$  die Zeit.

### 3.2 Wärmetransportmechanismen

Wie in Kapitel 3.1 dargestellt wurde, wird in der MEA der HT-PEFC Wärme erzeugt. Diese wird auf verschiedene Weisen von der MEA abgeführt. Die wesentlichen Grundlagen sollen in diesem Kapitel vorgestellt werden. In Abbildung 3-1 sind schematisch die prinzipiellen Mechanismen anhand eines vereinfachten Brennstoffzellenmodells skizziert.



**Abbildung 3-1: Wärmetransportmechanismen in der Brennstoffzelle**

Wie viel Wärme pro Zeiteinheit mittels Strahlung, Konvektion und Wärmeleitung transportiert wird, ist durch den Wärmestrom ( $\dot{Q}$ ) gegeben.

Die in der MEA aufgrund der elektrochemischen Reaktion von Wasserstoff und Sauerstoff zu Wasser erzeugte Wärme wird aufgrund des entstehenden Temperaturgradienten in einem Festkörper oder ruhenden Fluid transportiert (Wärmeleitung). Das Vermögen Wärme mittels Wärmeleitung zu transportieren wird durch die Wärmeleitfähigkeit ( $\lambda$ ) angegeben und ist eine temperaturabhängige Materialkonstante [92, p.23]. Aus dem Fourier'schen Gesetz der Wärmeleitung kann beispielsweise für eine ebene Wand der Dicke  $s$  und der Fläche  $A$  mit umfangseitigen adiabaten Randbedingungen der Wärmestrom durch die Wand bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen ( $T_1$ ,  $T_2$ ) berechnet werden.

$$\dot{Q} = \frac{\lambda \cdot A}{s} \cdot (T_1 - T_2) \quad (3-19)$$

Konvektiver Wärmetransport erfolgt, wenn die Wärme mit Hilfe von strömenden Gasen oder Flüssigkeiten transportiert wird. Ein Maß für die Wärmemenge, die ein Gas oder eine Flüssigkeit speichern und damit auch transportieren kann ist die Wärmekapazität ( $c$ ) [92]. Die Wärmekapazität gibt an, wie viel thermische Energie bezogen auf die

Temperaturänderung ( $T_{aus} - T_{ein}$ ) aufgenommen oder abgegeben wird. Für einen konstanten Druck ( $p$ ) wird eine Änderung der Enthalpie mit Hilfe der spezifischen Wärmekapazität ( $c_p$ ) ausgedrückt. Der durch ein strömendes Medium mit dem Massenstrom  $\dot{m}$  abgeführte Wärmestrom bei einem konstanten Druck lässt sich nach Gleichung (3-20) berechnen.

$$\dot{Q} = \dot{m} \cdot c_p \cdot (T_{aus} - T_{ein}) \quad (3-20)$$

Ein weiterer Wärmetransportmechanismus ist die Wärmestrahlung, bei der die Energie an der Oberfläche durch elektromagnetische Wellen an die Umgebung abgeführt wird. Andersherum nimmt ein Körper auch Energie auf, wenn elektromagnetische Wellen auf seine Materie auftreffen. Je nach Oberfläche variiert diese Menge jedoch aufgrund von unterschiedlichen Reflektionseffekten [93].

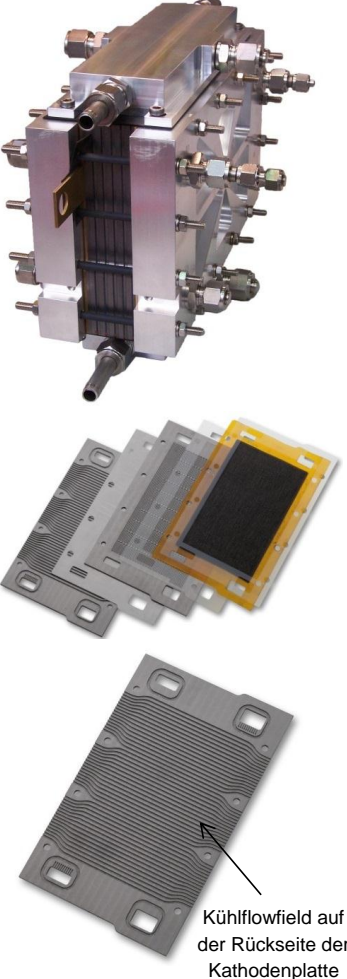
Häufig treten die Wärmetransportmechanismen nicht getrennt voneinander auf sondern wechselwirken miteinander. Beispielsweise kommt es bei der Übertragung von Wärme von einem Festkörper an ein vorbeiströmendes Fluid zu einer Kombination von Wärmeleitung und erzwungener Konvektion (konvektiver Wärmeübergang). Wegen der Haftbedingung des strömenden Fluids an der Wand kann dort kein konvektiver Wärmetransport stattfinden. Der Wärmetransport in dieser Grenzschicht wird daher von der Wärmeleitung dominiert. Die Wärmemenge die dabei übertragen wird hängt neben der Temperaturdifferenz zwischen dem strömenden Fluid und dem Festkörper vor allem von der Form des umströmten Körpers und den hydrodynamischen Bedingungen ab. Die Intensität des Wärmeübergangs an der Grenzfläche kann durch den Wärmeübergangskoeffizienten ( $\alpha$ ) angegeben werden. Der Wärmestrom in Abhängigkeit des Temperaturgradienten zwischen Festkörper ( $T_k$ ) und Fluid ( $T_f$ ) wird nach Gleichung (3-21) berechnet.

$$\dot{Q} = \alpha \cdot A \cdot (T_k - T_f) \quad (3-21)$$

Der Wärmeübergangskoeffizient lässt sich nur für wenige, sehr einfache Geometrien und laminare Strömung berechnen und wird daher meist experimentell ermittelten Tabellenwerken entnommen [94].

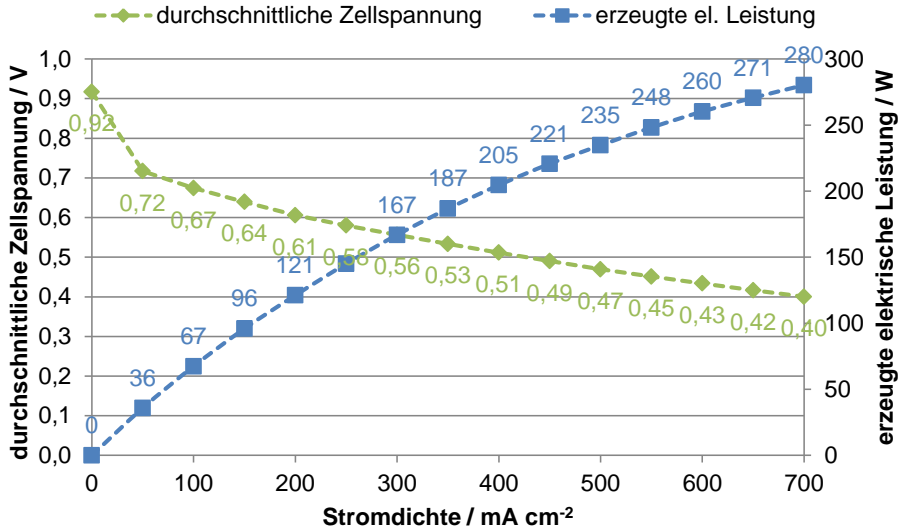
### 3.3 Energiebilanz für einen HT-PEFC-Stack

Die in Abschnitt 3.2 diskutierten Grundlagen der Wärmeübertragung sollen in diesem Abschnitt auf ein im Forschungszentrum Jülich entwickeltes HT-PEFC-Stackkonzept exemplarisch angewendet werden [95]. Die Kennwerte dieses 5-zelligen Short-Stacks sind in Tabelle 3-1 aufgelistet. Eine detaillierte Beschreibung des Stackaufbaus ist in Kapitel 5.1.1.1 zu finden.

**Tabelle 3-1: Kennwerte des im Forschungszentrum Jülich entwickelten HT-PEFC-Stackkonzeptes [95]**


Zellenzahl	5
Größe (h x b x t):	229 mm x 211 mm x 102 mm
MEA	BASF Celtec® P-1000 [96]
Aktive MEA-Fläche	200 cm <sup>2</sup> (110 mm x 182 mm)
Kühlung	Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder Zelle (in Kathodenplatte integriert)
Kühlkanalgeometrie	45 gerade rechteckige Kanäle (1,5 mm x 2 mm)
Wärmeträgermedium	Fragoltherm S-15-A [60]
Bipolarplatten-Material	Graphit/Phenolharz-Komposit, Eisenhut BBP 4 [97]
Anoden-Bipolarplatte	Parallelmäanderflowfield
Kathoden-Bipolarplatte	Parallelmäanderflowfield / gerades Kühlflowfield
Anodengas	Synt. Reformat (42 Vol.% H <sub>2</sub> , 57 Vol.% N <sub>2</sub> , 1 Vol.% CO)
Kathodengas	Luft
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$
Endplatten	Aluminium

Die erzeugte elektrische Leistung kann entweder aus MEA-Kennwerten der Hersteller berechnet, durch experimentelle Untersuchungen ermittelt oder Literaturwerten entnommen werden. Für die hier berechneten Energiebilanzen soll die erzeugte elektrische Leistung aus einer im Forschungszentrum Jülich experimentell ermittelten Strom/Spannungs-Kennlinie (vgl. Abbildung 3-2) des in Tabelle 3-1 gezeigten Stacks ermittelt werden. Hierbei ist anzumerken, dass die Strom/Spannungs-Kennlinie von der Temperaturverteilung im Stack abhängig ist und damit vom Kühlkonzept beeinflusst wird. Aus diesem Grund kann der Einfluss des Kühlkonzeptes auf die Berechnungen in der Energiebilanz nicht berücksichtigt werden. Dies wird aber zugunsten der Einfachheit des Modellansatzes in Kauf genommen.



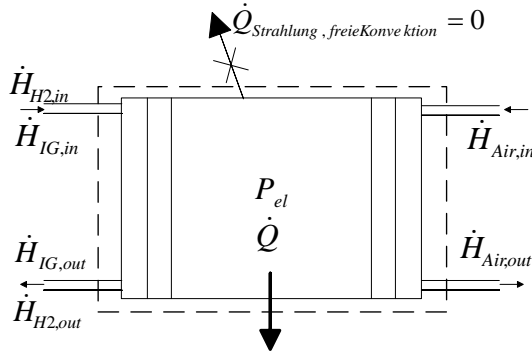
**Abbildung 3-2: Experimentell ermittelte Strom/Spannungs- und Strom/Leistungs-Kennlinie eines 5-zelligen Stacks mit den Randbedingungen aus Tabelle 3-1**

Um im Weiteren verschiedene Kühlkonzepte auszulegen, muss zuerst einmal berechnet werden, wie viel Wärme erzeugt und wie viel Wärme durch das Kühlsystem abgeführt werden muss. Dazu wird zwischen einer Energiebilanz mit adiabaten Randbedingungen und der Berücksichtigung des Wärmeübergangs an die Umgebung unterschieden. Diese beiden Fälle sind die Grenzfälle für einen realen Stackbetrieb. Bei einem thermisch isolierten Stack liegt in Abhängigkeit von der Isolierung die Wärmeabfuhr über die Oberfläche zwischen diesen beiden Grenzen. Außerdem wurden folgende Randbedingungen für die Berechnung der Energiebilanz festgelegt:

- Eintrittstemperatur der Gase 160 °C
- Austrittstemperatur der Gase 170°C
- Stationärer Betriebszustand

### 3.3.1 Adiabate Randbedingungen

Der erste Grenzfall ist die energetische Bilanzierung des Systems eines HT-PEFC-Stacks (vgl. Tabelle 3-1), bei dem keine Wärme über die Stackoberfläche zu- oder abgeführt wird (adiabate Randbedingungen). Abbildung 3-3 zeigt die Bilanzgrenze.



**Abbildung 3-3: Bilanzgrenze für ein HT-PEFC-Stackmodell**

Der Index IG („Inertgas“) bezeichnet dabei die im synthetischen Reformat enthaltenen, nicht an der unmittelbaren elektrochemischen Reaktion beteiligten trockenen Gase (CO und N<sub>2</sub>). Aus Abbildung 3-3 und der Gleichung (3-11) ergibt sich die Energiebilanz nach Gleichung (3-22).

$$\dot{Q} = \dot{H}_{air,in} + \dot{H}_{H2,in} + \dot{H}_{IG,in} - \dot{H}_{air,out} - \dot{H}_{H2,out} - \dot{H}_{H2O,out} - \dot{H}_{IG,out} - P_{el} \quad (3-22)$$

Zur Bilanzierung wird der Referenzpunkt 0 °C festgelegt und zunächst die ein- und austretenden Masseströme unter der Annahme eines idealen Gasgemisches berechnet.

$$\dot{m}_{air,in} = \frac{\lambda_{O2}}{\chi_{O2}} \frac{M_{air}}{4F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-23)$$

$$\dot{m}_{H2,in} = \lambda_{H2} \frac{M_{H2}}{2F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-24)$$

$$\dot{m}_{IG,in} = \lambda_{H2} \frac{1 - \chi_{H2}}{\chi_{H2}} \frac{M_{IG}}{2F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-25)$$

$$\dot{m}_{air,out} = \left[ (\lambda_{O2} - 1) \cdot \frac{M_{O2}}{4F} + \lambda_{O2} \cdot \frac{1 - \chi_{O2}}{\chi_{O2}} \cdot \frac{M_{N2}}{4F} \right] \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-26)$$

$$\dot{m}_{H2,out} = (\lambda_{H2} - 1) \cdot \frac{M_{H2}}{2F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-27)$$

$$\dot{m}_{IG,out} = \dot{m}_{IG,in} = \lambda_{H2} \frac{1 - \chi_{H2}}{\chi_{H2}} \frac{M_{IG}}{2F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-28)$$

$$\dot{m}_{H2O,gen} = \frac{M_{H2O}}{2F} \cdot I \cdot n_{cell} \quad (3-29)$$

Hierbei bezeichnet  $M_i$  die molare Masse sowie  $\lambda_i$  die Stöchiometrie der Komponente  $i$ ,  $F$  die Faradaykonstante,  $I$  die Stromstärke und  $n_{cell}$  die Anzahl der Zellen im Stack. Unter Berücksichtigung der Massenströme werden dann die ein- und austretenden Enthalpieströme berechnet.

$$\dot{H}_{air,in} = \dot{m}_{air,in} \cdot c_{p,air} \cdot \vartheta_{in} \quad (3-30)$$

$$\dot{H}_{H_2,in} = \dot{m}_{H_2,in} \cdot (c_{p,H_2} \cdot \vartheta_{in} + h_{HHV}^0) \quad (3-31)$$

$$\dot{H}_{IG,in} = \dot{m}_{IG,in} \cdot c_{p,IG} \cdot \vartheta_{in} \quad (3-32)$$

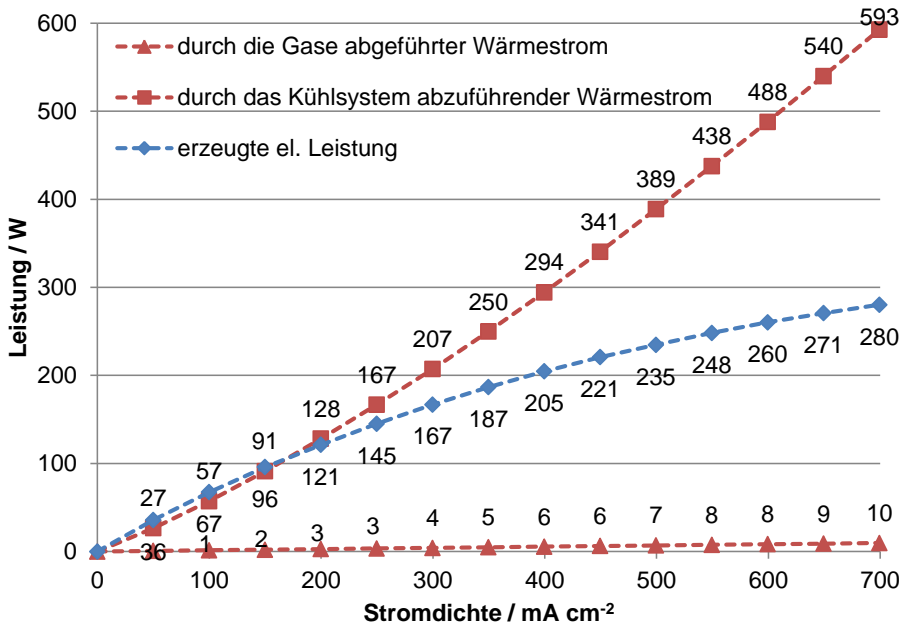
$$\dot{H}_{air,out} = \dot{m}_{O_2,out} \cdot c_{p,O_2} \cdot \vartheta_{out} + \dot{m}_{N_2,out} \cdot c_{p,N_2} \cdot \vartheta_{out} \quad (3-33)$$

$$\dot{H}_{H_2,out} = \dot{m}_{H_2,out} \cdot (c_{p,H_2} \cdot \vartheta_{out} + h_{HHV}^0) \quad (3-34)$$

$$\dot{H}_{IG,out} = \dot{m}_{IG,out} \cdot c_{p,IG} \cdot \vartheta_{out} \quad (3-35)$$

$$\dot{H}_{H_2O,out} = \dot{m}_{H_2O,gen} \cdot (c_{p,H_2O} \cdot \vartheta_{out} + h_{H_2O,l}^0) \quad (3-36)$$

Über den gesamten Stromdichtebereich ergibt sich damit der mit der Energiebilanzgleichung berechnete abzuführende Wärmestrom, welcher in Abbildung 3-4 dargestellt ist.



**Abbildung 3-4: Mit der Energiebilanzgleichung berechneter abzuführender Wärmestrom für einen Stack mit 5 Zellen, adiabaten Randbedingungen und synthetischem Reformatbetrieb, Betriebsbedingungen entsprechend Tabelle 3-1**

Hierbei ist zu erkennen, dass bis zu einer Stromdichte von etwa 200 mA cm<sup>-2</sup> mehr elektrische Leistung erzeugt wird als Wärmeleistung durch das Kühlsystem abzuführen ist. Die obere rote Kurve gibt für die gewählten Randbedingungen (ideal isolierter Stack)

den Betrag des Wärmestromes an, der mit Hilfe eines Kühlsystems abgeführt werden muss. Die unterer Kurve zeigt den durch die Reaktandengase abgeführten Wärmestrom bei  $\lambda_{A/K}=2/2$  und den in Tabelle 3-1 gegebenen Randbedingungen. In einem möglichen Betriebspunkt bei  $250 \text{ mA cm}^{-2}$  muss folglich  $167 \text{ W}$  thermische Leistung durch das Kühlsystem abgeführt werden.

### 3.3.2 Energiebilanz eines thermisch nicht isolierten Stacks

Als weiterer Grenzfall werden thermisch nicht isolierte Stacks betrachtet. Deshalb soll im Folgenden auch die Wärmeabfuhr durch freie Konvektion und Strahlung berechnet werden. Der Wärmetransport zur Oberfläche erfolgt dabei ausschließlich durch die Wärmeleitung aufgrund des Temperaturgradienten in den vorhandenen Materialien und Strukturen des Stacks nach Gleichung (3-19). Der Wärmeübergang an der Oberfläche des Stacks aufgrund der freien Konvektion kann nach Gleichung (3-21) berechnet werden. Der Wärmeübergangskoeffizient  $\alpha$  kann aus der Gleichung (3-37) für die Nusselt-Zahl berechnet werden.

$$Nu = \frac{\alpha \cdot l}{\lambda} = f(Gr, Pr, Geometrie) \quad (3-37)$$

Die Nusselt-Zahl ist eine Funktion der Rayleigh-Zahl (abhängig von der Grashof-Zahl), der Prandtl-Zahl und der Geometrie. Für die hier betrachtete freie Konvektion an den vertikalen, ebenen Wänden gilt [94, p. Fa2].

$$Nu = \left[ 0,825 + 0,387 \cdot (Ra \cdot f_1(Pr))^{1/6} \right]^2 \quad (3-38)$$

und für die freie Konvektion an den horizontalen ebenen Oberseiten Gleichung (3-39) und Gleichung (3-40) für horizontale ebene Unterseiten [94, pp. Fa3 –Fa4].

$$Nu = 0,766 \cdot (Ra \cdot f_2(Pr))^{1/5} \quad (3-39)$$

$$Nu = 0,6 \cdot (Ra \cdot f_1(Pr))^{1/5} \quad (3-40)$$

Aus der Grashof-Zahl

$$Gr = \frac{g \cdot l^3}{\nu^2} \cdot \beta \cdot (T_w - T_0) \quad (3-41)$$

und der Prandtl-Zahl kann dann die Rayleigh-Zahl ermittelt werden



$$Ra = Pr \cdot Gr \quad (3-42)$$

Die benötigten Faktoren  $f_1(Pr)$  und  $f_2(Pr)$  werden nach Gleichung (3-43) und (3-44) berechnet.

$$f_1(Pr) = \left[ 1 + \left( \frac{0,492}{Pr} \right)^{\frac{9}{16}} \right]^{-\frac{16}{9}} \quad (3-43)$$

$$f_2(Pr) = \left[ 1 + \left( \frac{0,322}{Pr} \right)^{\frac{11}{20}} \right]^{-\frac{20}{11}} \quad (3-44)$$

Dabei wird die Prandtl-Zahl für eine mittlere Temperatur aus Tabellenwerken abgelesen [94, p. Fa2].

$$T_m = \frac{1}{2}(T_w + T_0) \quad (3-45)$$

Mit

$\alpha$ : Wärmeübergangskoeffizient in  $\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$

$\lambda$ : Wärmeleitfähigkeit in  $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$

$l$ : Anströmlänge in m

$T_w$ : Wandtemperatur in K

$T_0$ : Umgebungstemperatur in K

$g$ : Erdbeschleunigung in  $\text{m s}^{-2}$

$\nu$ : kinematische Viskosität des Fluids in  $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$

$\beta = \frac{1}{T_0}$ : räumlicher Wärmeausdehnungskoeffizient bei idealem Gas in  $\text{K}^{-1}$

Für die Berechnung des Wärmestroms aufgrund der Abstrahlung sind die Berücksichtigung der Stefan-Boltzmannkonstante  $\sigma = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W m}^{-2} \text{K}^{-4}$  und die materialabhängigen Emissionsverhältnisse  $\varepsilon$  notwendig.

$$\dot{Q} = \sigma \cdot \varepsilon \cdot A \cdot (T_w^4 - T_0^4) \quad (3-46)$$

Dabei geht der Emissionskoeffizient für die Aluminiumendplatten mit  $\varepsilon=0,049$  und für die Graphit-Bipolarplatten mit  $\varepsilon=0,76$  in die Berechnung der Strahlung nach Gleichung (3-46) ein [94, p. Ka4].

Im Folgenden soll die in Abschnitt 3.3.1 vorgestellte Energiebilanz des 5-zelligen Shortstacks (vgl. Tabelle 3-1) um die Wärmeabgabe von der Oberfläche zur Umgebung erweitert werden. Für das Modell wird angenommen, dass alle Wände glatt sind und keine Stufen enthalten. Der Stack wird also als Quader mit beständigen glatten Oberflächen aus Graphit und Aluminium angenähert. Außerdem wird bei der Berechnung eine konstante Umgebungstemperatur von 25 °C und eine konstante Wandtemperatur von 165 °C angenommen. Die Ergebnisse für den 5-zelligen Stack mit 200 cm<sup>2</sup> aktiver MEA-Fläche sind in Tabelle 3-2 und Tabelle 3-3 aufgeführt. Es sollte beachtet werden, dass diese Rechenbeispiele nur für die jeweils genannten Bedingungen gelten und für andere Betriebsparameter und Stackgeometrien angepasst werden müssen.

**Tabelle 3-2 Berechnung der freien Konvektion**

	freie Konvektion an vertikalen Endplatten	freie Konvektion an vertikalen ebenen Seitenflächen	freie Konvektion an horizontalen ebenen Oberseiten	freie Konvektion an horizontalen ebenen Unterseiten
<b>Nusselt-Zahl</b>	33,9	33,9	6,6	5,0
<b>Rayleigh-Zahl</b>	13505655	13505655	115131	115131
<b>Grashof-Zahl</b>	19273143	19273143	164297	164297
<b>Prandtl-Zahl</b>	0,7	0,7	0,7	0,7
<b><math>f_1(Pr)</math></b>	0,3	0,3	-	0,3
<b><math>f_2(Pr)</math></b>	-	-	0,4	-
<b>mittlere Temperatur <math>T_m</math> / °C</b>	95	95	95	95
<b><math>\alpha</math> / W m<sup>-2</sup> K<sup>-1</sup></b>	8,2	8,2	7,7	5,9
<b>Wandtemperatur / °C</b>	165	165	165	165
<b>Umgebungstemperatur / °C</b>	25	25	25	25
<b><math>\lambda</math> / W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup></b>	0,0313	0,0313	0,0313	0,0313
<b><math>\nu</math> / 10<sup>-7</sup> m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup></b>	229,2	229,2	229,2	229,2
<b>Anzahl der Zellen</b>	5	5	5	5
<b>Anströmlänge / m</b>	0,130	0,130	0,027	0,027

<b>Fläche/ m<sup>2</sup></b>	0,029	0,010	0,014	0,014
<b>Wärmestrom durch freie Konvektion pro Fläche / W</b>	33,0	11,1	14,8	11,2
<b>Wärmestrom durch freie Konvektion gesamt / W</b>	<b>66,0</b>	<b>22,3</b>	<b>14,8</b>	<b>11,6</b>

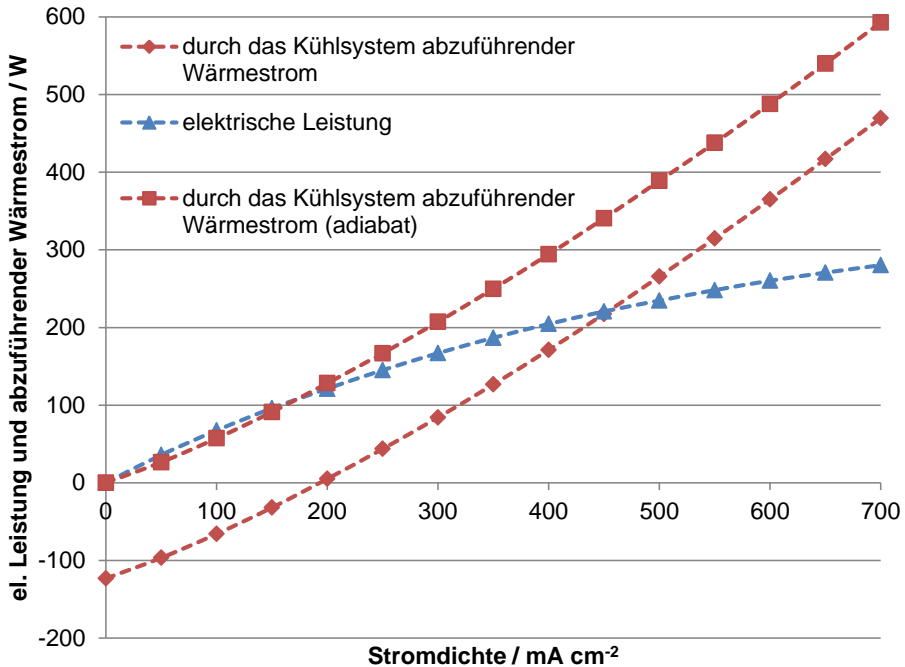
Tabelle 3-3: Berechnung der Strahlung

	Strahlung an vertikalen ebenen Endplatten	Strahlung an vertikalen ebenen Seitenflächen	Strahlung an horizontalen ebenen Oberflächen
<b>Emissionsverhältnis Graphit</b>	0,760	0,760	0,760
<b>Emissionsverhältnis Aluminium</b>	0,049	0,049	0,049
<b>Stefan Boltzmann-Konstante / W m<sup>-2</sup> K<sup>-4</sup></b>	5,67·10 <sup>-8</sup>	5,67·10 <sup>-8</sup>	5,67·10 <sup>-8</sup>
<b>Höhe / m</b>	0,130	0,130	0,222
<b>Breite / m</b>	0,260	0,015(Bipolarplatten) +0,060(Endplatten)	0,015(Bipolarplatten) +0,060(Endplatten)
<b>Fläche / m<sup>2</sup></b>	0,029	0,010	0,014
<b>Wärmestrom durch Strahlung pro Fläche / W</b>	2,3	0,8	1,3
<b>Wärmestrom durch Strahlung gesamt / W</b>	<b>4,6</b>	<b>1,6</b>	<b>2,7</b>

Eingesetzt in Gleichung (3-11) ergibt sich für die Energiebilanzgleichung:

$$\dot{Q} = \dot{H}_{air,in} + \dot{H}_{H2,in} + \dot{H}_{IG,in} - \dot{H}_{air,out} - \dot{H}_{H2,out} - \dot{H}_{H2O,out} - \dot{H}_{IG,out} - P_{el} - \dot{Q}_{St} - \dot{Q}_{fK} \quad (3-47)$$

In Abbildung 3-5 sind die Ergebnisse der Berechnung der mit Hilfe des Kühlsystems abzuführenden Wärme mit und ohne adiabate Randbedingungen dargestellt.



**Abbildung 3-5: Mit Hilfe des Kühlsystems abzuführende Wärmeströme**

Anhand von Abbildung 3-5 ist ersichtlich, dass bei dem hier untersuchten nicht isolierten Stack eine aktive Kühlung erst ab einer Stromdichte von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  notwendig ist. Unterhalb von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  muss der Stack zusätzlich beheizt werden. Deshalb ist hier der Einsatz einer kombinierten aktiven Kühlung/Heizung erforderlich. Anzumerken ist, dass der Bereich bei dem Wärme zugeführt werden muss (bis  $200 \text{ mA cm}^{-2}$ ) stark von der Annahme einer konstanten Oberflächentemperatur (hier:  $165 \text{ °C}$ ) geprägt ist. Bei einem realen, nicht aktiv gekühlten Stack, wird im Betriebspunkt  $0 \text{ mA cm}^{-2}$  keine Wärme erzeugt. Die Oberflächentemperatur würde daher der Umgebungstemperatur entsprechen und die Kurve müsste im Ursprung beginnen. Die beiden betrachteten Fälle sind die Grenzfälle für einen real abzuführenden Wärmestrom eines 5-zelligen Stacks mit den Randbedingungen aus Tabelle 3-1. Bei einer thermischen Isolierung liegt die Kurve dazwischen.

### 3.4 Wärmeübertragung an die Kühlkanäle des HT-PEFC-Stacks

Bei der Auslegung der Kühlkonzepte muss darauf geachtet werden, dass der Wärmeaustrag ausreichend ist und nicht von dem Wärmeübergang an die Kühlkanäle limitiert wird. Aus diesem Grund muss der Wärmeübergang an die vorgesehene Wärmesenke berechnet werden. Bei den in dieser Arbeit untersuchten Kühlkanalgeometrien (vgl. Tabelle 3-1), Kühlmedien und benötigten Volumenströmen liegt ausschließlich laminare Strömung vor.

Um zu überprüfen ob eine ausreichende Wärmeabfuhr durch das verwendete Kühlmedium und den eingestellten Volumenstrom gewährleistet ist, wird der maximal abführbare Wärmestrom ( $\dot{Q}$ ) über die erzwungene Konvektion in den Kühlbereichen nach Gleichung (3-21) berechnet. Hierbei ist  $A$  die Oberfläche an der der Wärmeübergang stattfinden kann, entsprechend der Geometrie der Strömungskanäle. Der Wärmeübergangskoeffizient ( $\alpha$ ) wird mit der Nusselt-Zahl ( $Nu$ ), dem Durchmesser des runden Kanalquerschnitts oder dem hydraulischen Durchmesser des rechteckigen Kanals ( $d_h$ ) und der Wärmeleitfähigkeit ( $\lambda$ ) für das Wärmeträgermedium ermittelt.

$$\alpha = \frac{Nu \cdot \lambda}{d_h} \quad (3-48)$$

Die Nusselt-Zahl wiederum kann für die hier vorliegende laminare Rohrströmung bei konstanter Wandtemperatur mit Hilfe der Gleichung (3-49) berechnet werden [94].

$$Nu = \sqrt[3]{3,66^3 + 0,644^3 \cdot Pr \cdot \left(Re \cdot \frac{d_h}{l}\right)^2} \quad (3-49)$$

Hierbei ist  $l$  die durchströmte Länge des Kanals,  $Pr$  die Prandtlzahl und  $Re$  die Reynoldszahl. Berechnet wird die Reynoldszahl aus der Querschnittsfläche ( $A$ ) des Kanals, dem Massenstrom ( $\dot{m}$ ) des Wärmeträgermediums, dem hydraulischen Durchmesser ( $d_h$ ) und der dynamischen Viskosität ( $\eta$ ) nach Gleichung (3-50).

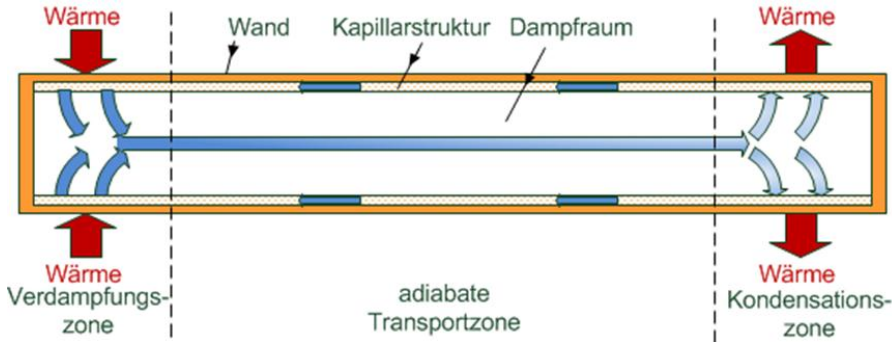
$$Re = \frac{\dot{m} \cdot d_h}{A \cdot \eta} \quad (3-50)$$

Die hier vorgestellte Berechnung gilt nur für laminare Strömung in geraden Kanälen. Bei einer unveränderlichen Geometrie hängt der Betrag des abzuführenden Wärmestroms von den variablen Parametern ab. Dies sind die Strömungsgeschwindigkeit des Kühlmediums und die Temperaturdifferenz ( $\Delta T$ ) zwischen Kühlmedium und Kanalwand. Eine Regelung im Brennstoffzellenbetrieb kann daher über den Volumenstrom und die Eintrittstemperatur des Kühlmediums erfolgen. Wie die Rechnungen im Anhang zeigen wird bei den hier verwendeten Flowfields und den hier untersuchten Randbedingungen der Wärmeübergang bei der Verwendung von Wärmeträgerflüssigkeit ab einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  (Stack mit 10 Zellen) limitiert (vgl. Tabelle A 2 und Tabelle A 3).

### 3.5 Aufbau und Funktionsweise von Heatpipes

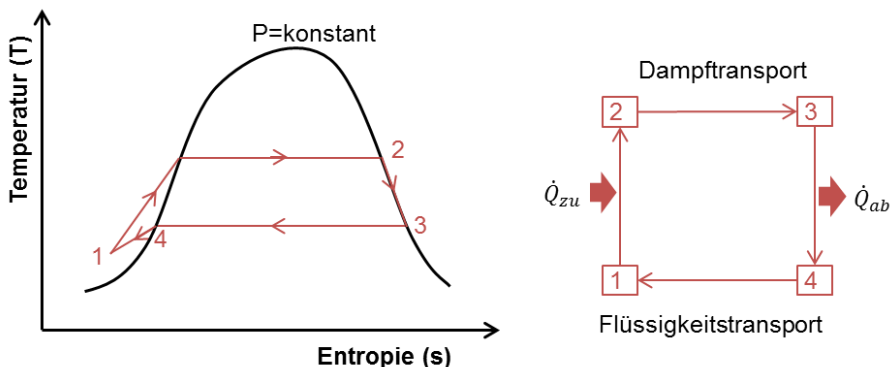
Eine Heatpipe besteht aus einem hermetisch geschlossenen Behälter (z.B. ein Rohr), welcher auf der Innenseite mit einer Kapillarstruktur ausgekleidet ist und außerdem eine Flüssigkeit enthält [98, p. 295]. Die Geometrie der Heatpipes ist aber nicht nur auf Rohre beschränkt, auch Rechteckprofile oder Platten können gefertigt werden [99]. Im Inneren der Heatpipe stellt sich, in Abhängigkeit von der Umgebungstemperatur, ein stationäres

Gleichgewicht zwischen der flüssigen und dampfförmigen Phase ein. Der Wärmetransport erfolgt nach dem in Abbildung 3-6 gezeigten Prinzip.



**Abbildung 3-6: Prinzipieller Aufbau einer Heatpipe**

Bei der Erwärmung eines Endes der Heatpipe verdampft dort die Flüssigkeit aus den Kapillarstrukturen und strömt aufgrund der freien Konvektion durch den Dampfraum an das Ende der Heatpipe mit niedrigerer Temperatur. Dort kondensiert der Dampf in der Kapillarstruktur und wird mit Hilfe der in den Kapillaren erzeugten Kapillarkräfte und gegebenenfalls der Gravitation zurücktransportiert. Das treibende Potential dieses Kreislaufes ist die Temperaturdifferenz, die aufgrund der identischen Verdampfungs- und Kondensationstemperatur des Wärmeträgermediums mit 1 K gering sein kann [94, p. M11, 100]. Trotz der geringen Temperaturdifferenz kann eine Heatpipe wegen der Ausnutzung des Phasenübergangs Wärme sehr effektiv über eine beträchtliche Distanz (im Verhältnis zum Querschnitt) transportieren [101, p. XV]. Beispielsweise kann eine Kupfer/Wasser-Heatpipe mit einer Länge von 1,2 m und einem Durchmesser von 0,022 m einen axialen Wärmetransport von 900 W bei einer Arbeitstemperatur von 160 °C ermöglichen [101, p. 40]. Aufgrund der Kapillarstruktur kann bei einer Heatpipe der Flüssigkeitstransport auch gegen die Schwerkraft erfolgen. Der thermodynamische Kreislauf einer Heatpipe ist in Abbildung 3-7 dargestellt.

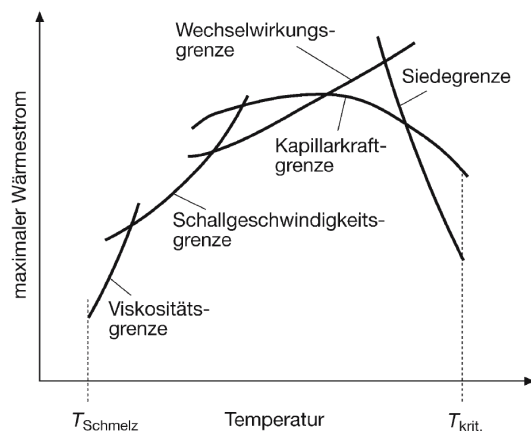


**Abbildung 3-7: Thermodynamischer Kreislauf einer Heatpipe, nach [101, p. 10]**

In (1) liegt das in der Heatpipe enthaltene Wärmeträgermedium in der flüssigen Phase vor. Durch Wärmezufuhr in der Verdampfungszone verdampft die Flüssigkeit (1→2) und der Druck erhöht sich. Der gesättigte Dampf (2) strömt aufgrund der Druckdifferenz durch den Dampfraum zur Kondensationszone (2→3). Dort kondensiert der Dampf (4) und wird mit Hilfe der Kapillarkraft und gegebenenfalls der Schwerkraft zur Verdampfungszone transportiert.

Der Temperaturbereich, in dem Heatpipes verwendet werden können, liegt zwischen 5 K und 2200 K und hängt von dem eingesetzten Wärmeträgermedium ab [100, p. 296]. Für den Einsatz in der HT-PEFC eignet sich eine wassergefüllte Kupferheatpipe. Eine detaillierte Beschreibung der Wärmeträgermedienauswahl ist im Anhang zu finden.

Der Betrieb einer Heatpipe kann prinzipiell in dem Temperaturbereich zwischen Schmelztemperatur des Wärmeträgers und der kritischen Temperatur erfolgen [94, p. MI9]. Weitere limitierende Faktoren des Wärmetransports in einer Heatpipe sind die Kapillarkraftgrenze, die Viskositätsgrenze, die Schallgeschwindigkeitsgrenze, die Wechselwirkungsgrenze und die Siedegrenze (vgl. Abbildung 3-8). Ein stationärer Betrieb kann nur mit einem Wärmestrom und einer Temperatur unterhalb dieser Kurve erfolgen.



**Abbildung 3-8: Leistungsgrenzen der Heatpipe [94, p. MI9]**

Die Viskositätsgrenze limitiert den Wärmetransport bei Betriebstemperaturen, die geringfügig oberhalb der Schmelztemperatur des Wärmeträgermediums liegen. Dort sind Dampfdruck und Dampfdichte sehr gering und viskose Kräfte überwiegen. Dadurch kann der Druckabfall so groß wie der Absolutdruck in der äußeren Verdampferzone werden und die Strömung wird nicht mehr aufrechterhalten.

Die Schallgeschwindigkeitsgrenze, die in erster Linie bei Hochtemperaturheatpipes ( $> 500$  K) mit metallischen Wärmeträgern (z.B. Na) eine Rolle spielt, wird erreicht, wenn die Dampfströmung Schallgeschwindigkeit erreicht. Eine weitere Steigerung des axialen Wärmetransports ist auch durch eine weitere Druckabsenkung mittels niedrigerer Temperaturen nicht mehr möglich.

Bei der Wechselwirkungsgrenze werden an der Phasengrenze der offenen Kapillarstrukturen Flüssigkeitstropfen durch die Dampfströmung mitgerissen. Dadurch kann es zur Austrocknung in der Verdampferzone kommen, was den Wärmetransport limitiert oder unterbindet.

Im Falle der Siedegrenze tritt Blasensieden aufgrund großer radialer Wärmestromdichten auf. Bei Sinterkapillarstrukturen oder Netzen verdrängen die Dampfblasen den Flüssigkeitsstrom und es kommt zur lokalen Austrocknung [94].

Bei einer Wasser/Kupfer-Heatpipe ist die Kapillarkraftgrenze der limitierende Einflussfaktor auf die Leistungsgrenze [101, p. 33]. Sie tritt auf, wenn die Pumpkraft der Kapillaren nicht ausreicht, um genügend Flüssigkeit zur Verdampferzone zu transportieren. Dies ist immer dann der Fall, wenn die Kapillardruckdifferenz kleiner als die Summe aller Druckabfälle ist. Ein sicherer Betrieb ist damit nicht mehr gewährleistet. Die beiden Einflussfaktoren auf die Kapillarkraftgrenze sind die physikalischen Eigenschaften der Kapillarstruktur und des Wärmeträgermediums. Da ein Einflussfaktor auf die Kapillarkraftgrenze mit der Auswahl des Wärmeträgermediums Wasser schon feststeht, ist nur noch eine Einflussnahme auf die Kapillarstruktur möglich. Drei Eigenschaften der Kapillarstruktur sind besonders wichtig [101]:

1. Kleiner Kapillardurchmesser führt zu einer hohen Kapillardruckdifferenz (besonders wichtig bei langen Heatpipes oder Betrieb gegen die Schwerkraft).
2. Hohe Permeabilität (große Kapillare), um den Strömungswiderstand zu minimieren und damit eine hohe Wärmetransportkapazität zu erreichen.
3. Hohe thermische Leitfähigkeit gewährleistet einen geringen Temperaturgradienten über die Heatpipe.

Da sich 1. und 2. widersprechen, ist ein Kompromiss bei der Auswahl der Kapillarstruktur notwendig.

Um das Wärmetransportvermögen beurteilen zu können, kann bei einigen Kapillarstrukturen der Wärmetransport mit Hilfe der Wärme- und Strömungswiderstände in der Heatpipe berechnet werden. Dies bedarf aber detaillierter Kenntnisse über den Aufbau und die Materialzusammensetzung der Heatpipe sowie den Betriebsbedingungen. Die Wärmetransportleistung ist deshalb, je nach Arbeitstemperatur, Abweichung von der vertikalen Einbaulage und Krümmung der Heatpipe, unterschiedlich. Für viele Heatpipes ist daher eine experimentelle Bestimmung der Wärmetransportleistung nötig. Zur Berechnung von Heatpipes können diese als einfache Wärmeleiter mit besonders geringem Wärmewiderstand angenähert werden [94, pp. MI6 ff].





## 4 Messtechnik und Versuchsbedingungen

### 4.1 Teststand

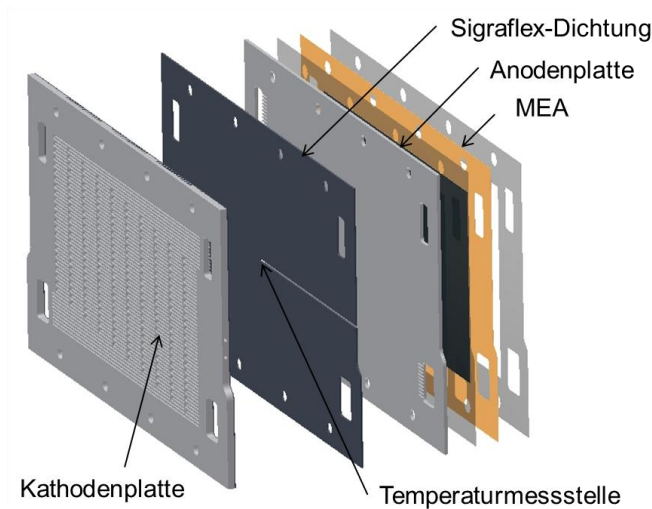
Die hier untersuchten HT-PEFC-Stacks werden in einem Teststand der Firma Hydrogenics des Typs G 9205 betrieben [102]. Der Teststand versorgt den Stack mit den benötigten Reaktandengasen und temperiert gegebenenfalls die Wärmeträgerflüssigkeit. Insgesamt können folgende Betriebsparameter eingestellt werden:

- Zusammensetzung der Reaktandengase auf Anoden- und Kathodenseite
- Mengenströme der Gase geregelt mit einem Bronckhorst EL-Flow® Durchflussregler
- Widerstand als Verbraucher für Stromstärken bis 400 A (Variable Last TDI RBL232 50-400-200)
- Eintrittstemperatur der Gase, die mit Hilfe von Schlauchheizungen vorgewärmt werden
- Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom (0 bis 7 L min<sup>-1</sup>), gefördert mit einer Zentrifugalpumpe (NPY-2251-MK-HT)
- Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit geregelt mit einem elektrischen Heizer (Leistung: 1,2 kW) und einem Luftkühler

### 4.2 Temperaturmessung

Zur Temperaturmessung kommen Thermoelemente (Typ K) zum Einsatz. Die Thermoelemente sind an einen KEITHLEY 2701 Data Logger angeschlossen [103]. Die Umrechnung der Thermoelement-Rohdaten und die Datenaufzeichnung erfolgt mit Hilfe der Software Testpoint [104].

Wie in Abbildung 4-1 dargestellt, sind die Thermoelemente nicht direkt auf der MEA positioniert. Eine Temperaturmessung direkt an der MEA ist aufgrund der MEA-Dotierung mit Phosphorsäure, dem Risiko von Kurzschlüssen und dem notwendigen Sicherstellen der Dichtung problematisch [105-107].



**Abbildung 4-1: Positionierung der Temperaturmessung**

Aufgrund der Positionierung weichen die gemessenen Temperaturen geringfügig von den in der MEA tatsächlich auftretenden Werten ab. Die Distanz zwischen MEA und Thermoelement beträgt 2,5 mm und die effektive Wärmeleitfähigkeit (0,5 mm Sigrflex und 2 mm Bipolarplattenmaterial) beträgt  $24,4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . Damit ergibt sich abhängig von dem zu übertragenden Wärmestrom ( $118,5 \text{ W}$  bei  $700 \text{ mA cm}^{-2}$ ) eine maximale Temperaturdifferenz und damit Abweichung von den gemessenen Werten von 0,6 K.

Neben der Temperaturabweichung aufgrund der Positionierung ist die Messunsicherheit durch die verwendeten Messgeräte zu beachten. Eine Abschätzung des durch die Messung verursachten systematischen Fehlers kann mit Hilfe einer Kalibrierungsmessung erfolgen. Dazu wurden die verwendeten Thermoelemente (Typ K) in einem Wärmeträgerflüssigkeitsbad bei  $160 \text{ °C}$  mit dem in den Versuchen eingesetzten Messaufbau (Verkabelung, Data Logger und PC) verbunden und die systematische Abweichung der Thermoelementdaten bestimmt. Es konnte gezeigt werden, dass die systematische Messwertabweichung maximal  $\pm 1,2 \text{ K}$  beträgt.

Um eine möglichst umfassende Charakterisierung der Temperaturverteilungen im Stack zu erhalten, werden Strom/Spannungs-Kennlinien aufgenommen. Dazu wird die Stromdichte ausgehend von der offenen Zellspannung in  $50 \text{ mA cm}^{-2}$ -Schritten erhöht. Die aufgezeichneten Temperaturen werden unmittelbar vor der Stromdichteerhöhung ausgewertet. Die Stromdichte wird erhöht, sobald sich eine stationäre Temperaturverteilung eingestellt hat. Außer bei offener Zellspannung betrug die Haltezeit bei konstanter Stromdichte mindestens 600 s. Die verkürzte Haltezeit bei offener Zellspannung ist notwendig, um die in diesem Betriebspunkt erhöhte Degradation zu begrenzen [108, 109].

## 5 Wärmeträgerflüssigkeitskühlung

In diesem Kapitel werden die in Kapitel 2 identifizierten Kühlkonzepte, die Wärmeträgerflüssigkeit als Wärmeträgermedium verwenden, untersucht. Wie in Kapitel 2.2 beschrieben, ist die interne aktive Kühlung mit einem flüssigen Wärmeträgermedium für Stacks der kW-Klasse das bislang bevorzugte Kühlkonzept. Aufgrund des HT-PEFC-Betriebstemperaturbereichs von 120 bis 180 °C ist Wärmeträgerflüssigkeit das am häufigsten verwendete Wärmeträgermedium. Wärmeträgerflüssigkeiten haben die Eigenschaft, dass sie im gesamten Betriebstemperaturbereich der HT-PEFC in flüssiger Phase vorliegen. Es kommt sowohl bei tiefen Temperaturen während des Anfahrvorganges vom Umgebungstemperaturniveau bis über die maximale Betriebstemperaturgrenze von 180 °C hinaus zu keinem Phasenwechsel. Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen kommt die Wärmeträgerflüssigkeit Fragoltherm S-15-A zum Einsatz [60]. Diese synthetische Wärmeträgerflüssigkeit auf Basis von Polyglykol kann im Temperaturbereich von -13 bis 205 °C eingesetzt werden.

Die angedachte Kombination der HT-PEFC mit einem Brenngaserzeugungssystem führt zu der Notwendigkeit, die Versuche mit einem Anodengas durchzuführen, welches die Eigenschaften des real erzeugten Reformats reproduziert. Um den technischen Aufwand und die Kosten zu begrenzen, werden die für den Brennstoffzellenbetrieb inerten Gase CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> und Ar durch N<sub>2</sub> ersetzt. Wie von Lüke [22, p. 57] gezeigt wurde, ergeben sich dadurch keinerlei Performanceänderungen. Im Folgenden wird daher ein synthetisches, trockenes Reformat mit 42 Vol.-% H<sub>2</sub>, 1 Vol.-% CO und 57 Vol.-% N<sub>2</sub> verwendet. Als Kathodengas wird Luft verwendet.

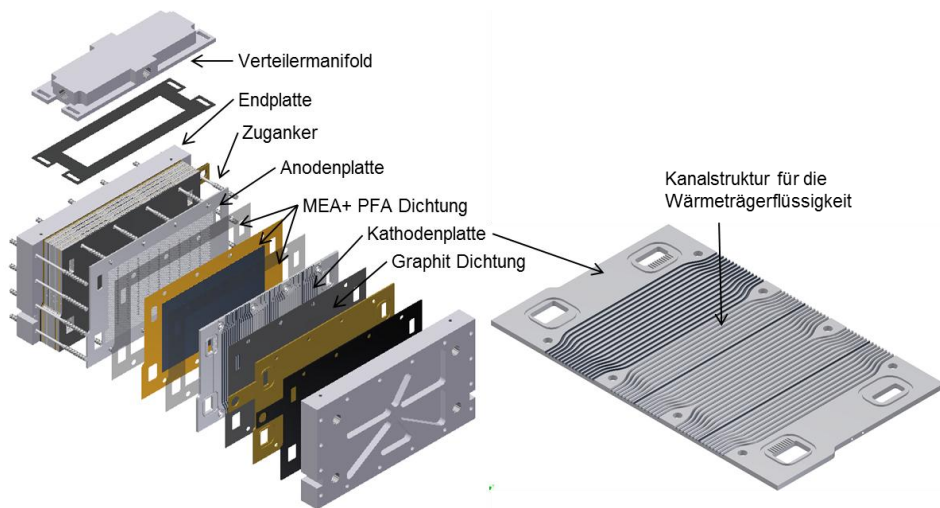
### 5.1 Interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mittels integrierter Flowfields

Die interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mittels integrierter Flowfields stellt quasi den Ausgangszustand der Untersuchungen der aktiven Kühlkonzepte dar. Das Stackkonzept wurde im Forschungszentrum Jülich entwickelt und ist bereits vielfach eingesetzt und untersucht worden [35, 95, 110]. Erste experimentelle Untersuchungen mit einer Temperaturverteilungsmessplatte der Firma S++<sup>®</sup> Simulation Service haben gezeigt, dass mit diesem Kühlkonzept eine homogene Temperaturverteilung über die aktive Fläche erreicht wird [35, 111]. Bei einem Wasserstoff/Luft-Betrieb, einem Kühlvolumenstrom von 1,5 L min<sup>-1</sup>, einer Stromdichte von 600 mA cm<sup>-2</sup> und einem 5-zelligen Stack wurde eine maximale Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche von 3,2 K ermittelt. Es konnte gezeigt werden, dass sich durch eine Verringerung des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms auf 0,5 L min<sup>-1</sup> die Temperaturdifferenz auf 6 K erhöht [22, p. 80]. Variationen der Kühlmedieneintrittsbedingungen bei einem Reformatbetrieb liegen bisher in ausreichendem Maße nicht vor. Für einen 10-zelligen Stack wird daher im Folgenden die experimentell bestimmte Temperaturverteilung vorgestellt.

### 5.1.1 Versuchsaufbau

#### 5.1.1.1 Stackaufbau und Funktionsweise des Kühlsystems

Der hier untersuchte HT-PEFC-Stack hat eine aktive MEA-Fläche von  $200\text{ cm}^2$  ( $11\text{ cm} \times 18,2\text{ cm}$ ) mit einem Parallelmäander-Gasflowfield auf der zweigeteilten Kathoden- bzw. Anodenbipolarplattenhalbschale (vgl. Tabelle 3-1). Auf der Rückseite der Kathodenhalbschale ist ein Flowfield mit geraden Kanälen für die Wärmeträgerflüssigkeitsströmung eingelassen. Dieses Flowfield wird mittels einer elektrisch leitfähigen Graphitflachdichtung abgedichtet [112]. Die Dichtwirkung wird erreicht, wenn der Stack mit Hilfe von Zugankern verspannt wird. Die Zu- und Abfuhr der Wärmeträgerflüssigkeit sowie die Verteilung auf jede Zelle wird durch extern angebrachte Manifolds gewährleistet. In Abbildung 5-1 ist der Stackaufbau dargestellt.



**Abbildung 5-1: CAD-Aufbauzeichnung des HT-PEFC-Stacks mit integrierter Wärmeträgerflüssigkeitskühlung**

Die Wärmeträgerflüssigkeit wird mittels des Verteilermanifolds zugeführt und strömt im Anschluss von oben nach unten durch die gerade Kanalstruktur auf der Rückseite der Kathodenhalbschale zum Sammlermanifold (Sammlermanifold in Abbildung 5-1 nicht dargestellt). Eine Temperierung der Wärmeträgerflüssigkeit findet außerhalb des Stacks statt. Aufgrund der Integration des Kühlflowfields in die Kathodenhalbschale wird jede elektrochemische Zelle gekühlt. Die wesentlichen Kenndaten des hier untersuchten HT-PEFC-Stacks sind in Tabelle 5-1 zusammengefasst.

**Tabelle 5-1: Kenndaten des untersuchten HT-PEFC-Stacks**

Zellenzahl	10
MEA	BASF Celtec® P-1000 [96]
Aktive MEA-Fläche	$200\text{ cm}^2$ ( $110\text{ mm} \times 182\text{ mm}$ )
Kühlung	Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder Zelle

Kühlkanalgeometrie	45 gerade rechteckige Kanäle (1,5 mm x 2 mm)
Wärmeträgermedium	Fragoltherm S-15-A [60]
Thermische Isolation	mindestens 20 mm Silikonschaum [113]
Bipolarplatten-Material	Graphit/Phenolharz-Komposit [97]
Anoden- Bipolarplatte	Parallelmäander-Flowfield
Kathoden-Bipolarplatte	Parallelmäander-Flowfield / gerade Kanäle des Kühlflowfields
Anodengas	Synt. Reformat (42 Vol.% H <sub>2</sub> , 57 Vol.% N <sub>2</sub> , 1 Vol.% CO)
Kathodengas	Luft
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$
Gaseintrittstemperatur	160 °C

### 5.1.1.2 Temperaturmessung

Zur Temperaturmessung wurden insgesamt 15 Thermoelemente (Typ K) [114] im Stack integriert. Zusätzlich wurden Thermoelemente zur Bestimmung der Ein- und Austrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit vorgesehen. Zur Messung der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle wurden 11 Thermoelemente in die Sigraflexdichtung zwischen den Bipolarhalbschalen integriert. Die Messung findet auf Höhe des geometrischen Zentrums der MEA statt. Um die vertikale Temperaturverteilung messen zu können, wurde eine Temperaturmessplatte mit 5 vertikal verteilten Messstellen verwendet. Die Positionierung der Thermoelemente ist in Abbildung 5-2 dargestellt.

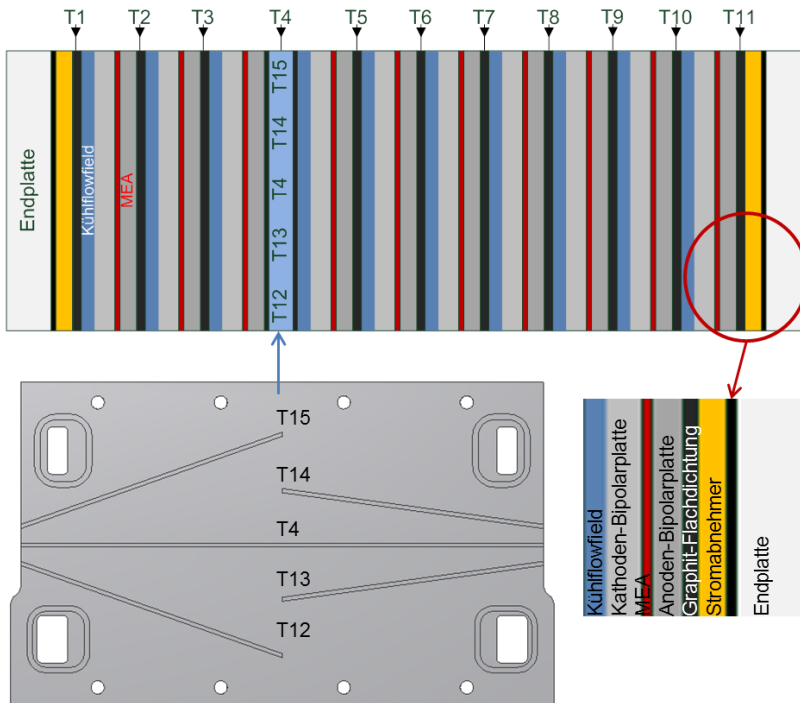
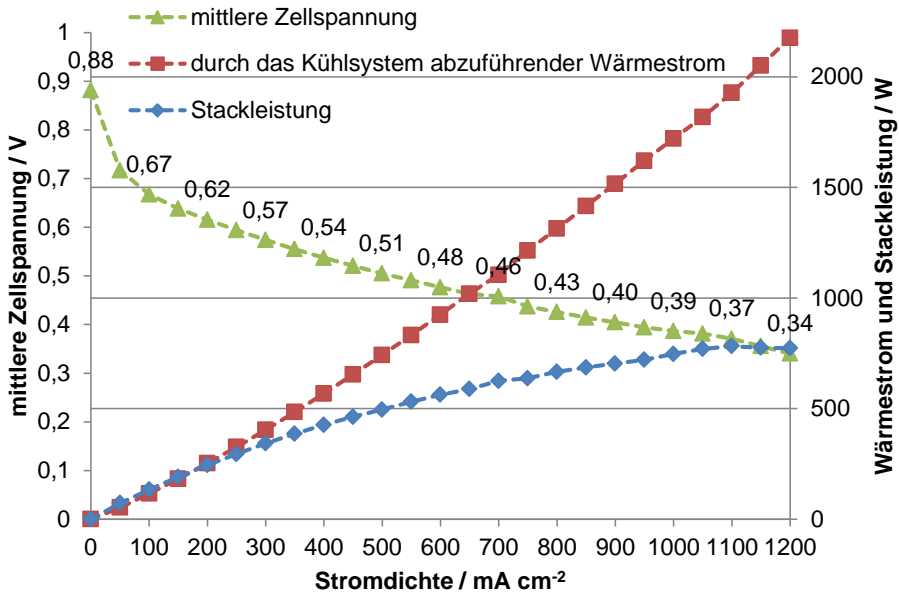


Abbildung 5-2: Positionierung der Thermoelemente im HT-PEFC-Stack

### 5.1.2 Ergebnisse der Temperaturverteilungsmessungen

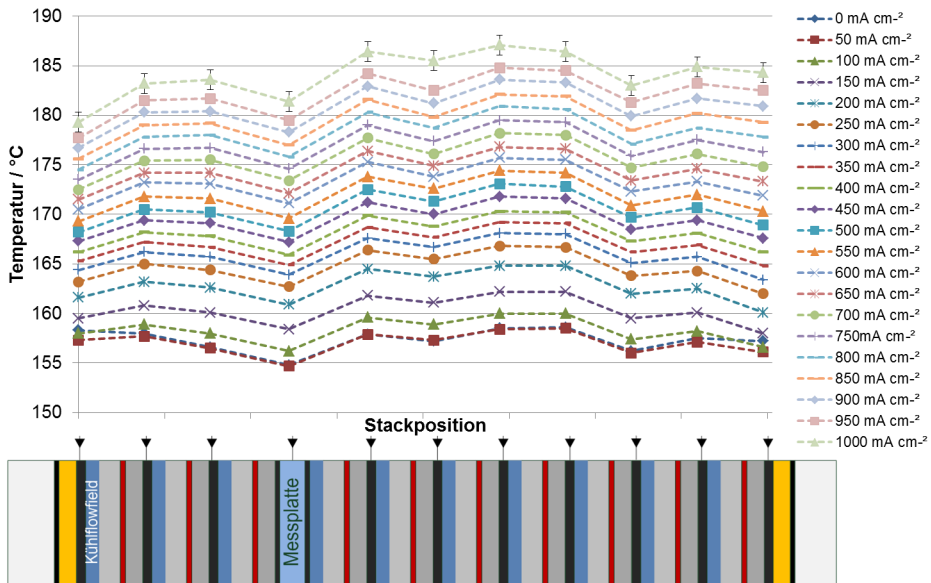
Um eine möglichst umfassende Charakterisierung der Temperaturverteilungen im Stack zu erhalten, werden Strom/Spannungs-Kennlinien aufgenommen (vgl. Kapitel. 4.2) Als Referenzfall werden eine konstante Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von 160 °C und ein konstanter Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom von 4 L min<sup>-1</sup> festgelegt. Die mit diesen Betriebsbedingungen ermittelte Strom/Spannungs-Kennlinie ist in Abbildung 5-3 dargestellt.



**Abbildung 5-3: Polarisationskurve, Stromdichte/Leistungs-Kennlinie und berechneter abzuführender Wärmestrom bei  $T_{WT,ein}=160$  °C und  $\dot{V}_{WT,ein}=4$  L min<sup>-1</sup>**

Gut zu erkennen ist eine Peakleistung von 782 W<sub>el</sub>, die im Reformatbetrieb bei einer Stromdichte von 1100 mA cm<sup>-2</sup> erreicht wird. Die mittlere Zellspannung sinkt mit steigender Stromdichte und beträgt ab einer Stromdichte von 500 mA cm<sup>-2</sup> weniger als 0,5 V.

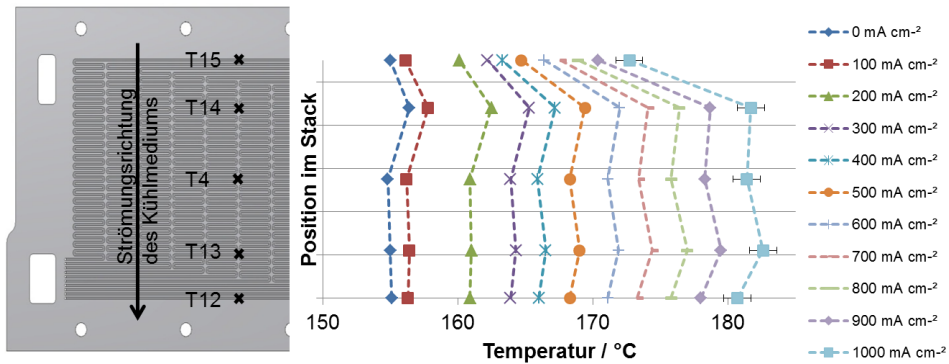
Ob eine ausreichende Kühlung im gesamten Betriebsbereich bei diesen Betriebsbedingungen der Kühlung gewährleistet ist, lässt sich durch die Analyse der Temperaturverteilungsmessung ermitteln. Die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle ist für diese Betriebsbedingungen in Abbildung 5-4 dargestellt.



**Abbildung 5-4:** Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei  $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$

Anhand Abbildung 5-4 ist zu erkennen, dass mit steigender erzeugter Wärme (steigende Stromdichte) das Temperaturniveau im Stack steigt. Dies ist auf die konstanten, unregulierten Kühlbedingungen zurückzuführen. Die Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle steigt mit steigender Stromdichte. Insgesamt ist die Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle mit maximal 7,8 K bei einer Stromdichte von  $1000\text{ mA cm}^{-2}$  gering. Bei einem Betrieb bei einer Stromdichte von  $750\text{ mA cm}^{-2}$  überschreitet die Stacktemperatur lokal die maximal zulässige Betriebstemperatur von  $180\text{ °C}$ . Mit steigender Stromdichte wird an immer mehr Stellen im Stack die maximal zulässige Betriebstemperatur überschritten. Ein Stackbetrieb ist bei diesen Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsparametern nur bis zu einer Stromdichte von  $750\text{ mA cm}^{-2}$  zulässig. Aufgrund der Positionierung der Thermoelemente ist nur eine Aussage über die Temperaturen auf Höhe der geometrischen Mitte des Stacks zu treffen (vgl. Abbildung 5-2). Die Strömungsrichtung der Wärmeträgerflüssigkeit ist jedoch von oben nach unten senkrecht dazu. Somit ist zu erwarten, dass ein lokales Temperaturmaximum unterhalb der horizontal von Zelle zu Zelle angeordneten Thermoelemente auftritt. In Abbildung 5-5 ist die vertikal gemessene Temperaturverteilung dargestellt (vgl. Abbildung 5-2).



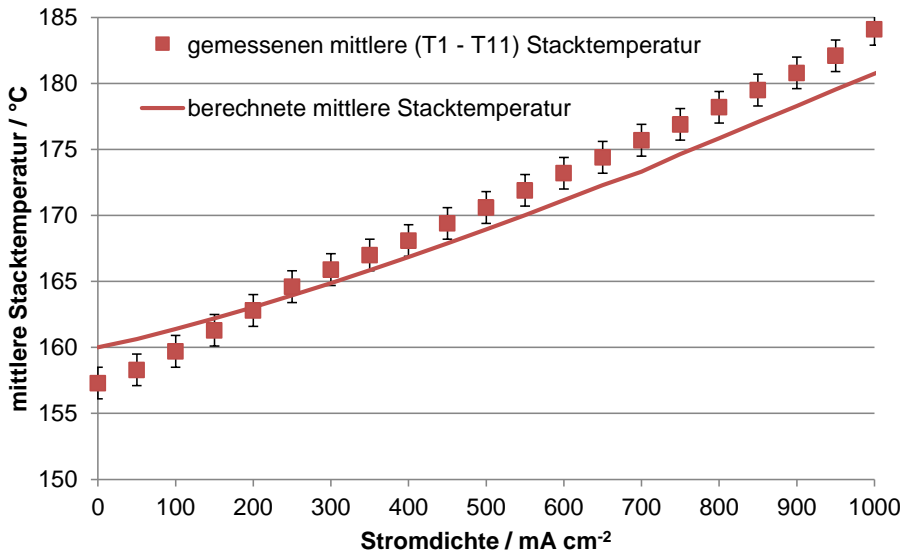


**Abbildung 5-5: Vertikal in der Temperaturmessplatte gemessene Temperaturverteilung bei  $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$**

In Abbildung 5-5 ist zu erkennen, dass im Bereich des Wärmeträgerflüssigkeitseintritts (T15) die Temperaturen am niedrigsten sind. Bei hohen Stromdichten (ab  $700\text{ mA cm}^{-2}$ ) bildet sich das zu erwartende Temperaturmaximum an Messposition T13 [35, 110]. Die im Austrittsbereich etwas geringeren Temperaturen (T12) sind auf den Einfluss der nicht ganz idealen thermischen Isolation zurückzuführen. Aufgrund einer schlechteren Kontaktierung mit der Temperaturmessplatte ist ein Temperaturpeak im Thermoelement T14 zu erkennen. Wird dieser Messfehler korrigiert, zeigt sich im Bereich niedrigerer Stromdichten ein nahezu konstanter Temperaturverlauf. Hier muss, wie in der Energiebilanzrechnung gezeigt wurde, ein geringer Wärmestrom (vgl. Abbildung 3-5) abgeführt werden. Aus diesem Grund ist eine nahezu identische Austrittstemperatur in Bezug auf die Eintrittstemperatur zu erwarten. Mit steigender Stromdichte ist bei Stromdichten ab  $300\text{ mA cm}^{-2}$  zu sehen, dass die Temperaturen bis Messposition T13 ansteigen und im Anschluss kurz vor dem Wärmeträgerflüssigkeitsaustritt etwas abfallen. Insgesamt konnte eine maximale Temperaturdifferenz in horizontaler Richtung von 9,9 K bei einer Stromdichte von  $1000\text{ mA cm}^{-2}$  gemessen werden. Im Vergleich zu Messungen von Lücke [22, pp. 80f] ist die hier gemessenen maximale Temperaturdifferenz für den Betriebspunkt  $j=600\text{ mA cm}^{-2}$  mit 5,6 K höher (3,1 K). Allerdings wurden die Messungen von Lücke mit einem 5-zelligen Stack ( $A_{aktiv}=200\text{ cm}^2$ ,  $\dot{V}_{WT}=2\text{ L min}^{-1}$ ) im Wasserstoffbetrieb ( $\lambda_{A/K}=1,2/2$ ) durchgeführt. Zudem erstrecken sich die Temperaturmesspositionen bei Lücke nicht über die gesamte Höhe der aktiven MEA Fläche, sondern decken nur etwa 90 % ab (bezogen auf die hier gemessenen Distanz zwischen T12 und T15, vgl. [22, p. 68]). Simulationen und bestätigende Vergleichsmessungen für einen 5-zelligen Stack im Reformatbetrieb ( $\lambda_{A/K}=1,2/2$ ) von Kvesic [115, p. 100] zeigen, dass im Betriebspunkt  $j=600\text{ mA cm}^{-2}$  die Temperaturdifferenz etwa 7 K beträgt und damit 1,4 K über dem hier gemessenen Bereich. Ein Grund ist, dass im Reformatbetrieb  $\lambda_{A/K}=1,2/2$  der Wirkungsgrad geringer ist und somit mehr Wärme abgeführt werden muss. Wird die Temperaturdifferenz mit Hilfe von Gleichung (3-20) berechnet ergibt sich für den Betriebspunkt  $j=600\text{ mA cm}^{-2}$  ( $\dot{Q}=924\text{ W}$ ) eine Temperaturdifferenz von 6,8 K zwischen ein- und austretendem Wärmeträgermedium. Im Vergleich zur Messung ist die Temperaturdifferenz 1,2 K höher, allerdings liegen die Messstellen nicht auf Höhe des

Ein- und Austritts der Wärmeträgerflüssigkeit (vgl. Abbildung 5-2) und die Toleranz der Thermoelemente liegt ebenfalls bei 1,2 K. Ein Vergleich zwischen Messung und Berechnung für alle Betriebspunkte ist im Anhang zu finden (vgl. Abbildung A 2).

Insgesamt liegen die mittleren Temperaturen (T1-T11) mit 157,3 bis 179,5 °C unterhalb der maximal zulässigen Betriebstemperatur von 180 °C bis zu einer Stromdichte von 900 mA cm<sup>-2</sup>. Eine analytische Abschätzung der Temperatur im Stack kann über die mittlere Temperatur des Wärmeträgermediums (Gleichung (3-20)) und unter Berücksichtigung des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf die Wärmeträgerflüssigkeit (Gleichung (3-21)) erfolgen. Die Ergebnisse der Berechnung sind in Abbildung 5-6 dargestellt.



**Abbildung 5-6: Berechnete und gemessene (T1 – T11) mittlere Stacktemperatur bei  $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$**

Wie in Abbildung 5-6 zu erkennen, stimmen die Messungen sehr gut mit den Berechnungen überein. Die maximale Abweichung beträgt 2,8 %.

### 5.1.3 Parameterstudie mit variierenden Eintrittsbedingungen

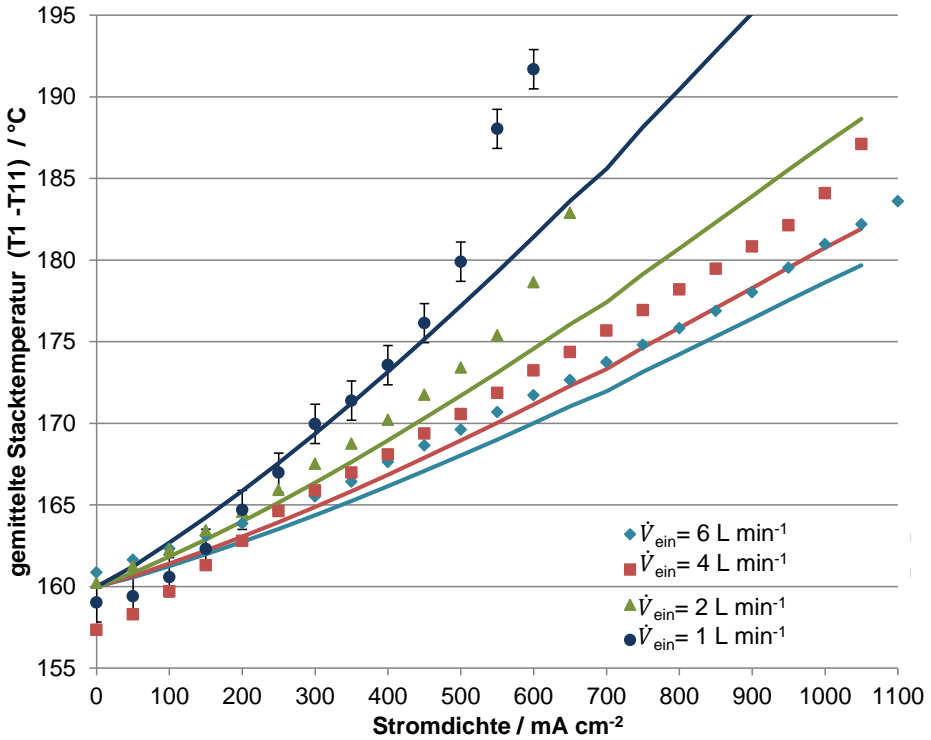
Wie aus Kapitel 3.4 hervorgeht, sind die Einflussparameter auf die Temperaturverteilung die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur und der Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom. Daher sollen in der hier durchgeführten Parameterstudie der Einfluss dieser Parameter auf die Stacktemperatur untersucht werden. Die variierten Parameter sind in Tabelle 5-2 aufgeführt.

**Tabelle 5-2: Variation der Einflussparameter auf die Stacktemperatur**

Konstante Parameter	Reformat $\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$ $T_{\text{Gas,ein}}=160\text{ °C}$ $\dot{V}_{\text{WT,ein}}=4\text{ L min}^{-1}$	Reformat $\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$ $T_{\text{Gas,ein}}=160\text{ °C}$ $T_{\text{WT,ein}}=160\text{ °C}$
Parameter-Variation	Wärmeträgerflüssigkeitseintritts- temperatur / °C	Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom / L min <sup>-1</sup>
	140	1
	150	2
	160	4
	170	6

Diese Parameter wurden als konstante Eintrittsbedingungen für die Wärmeträgerflüssigkeit und das Reaktandengas verwendet. Um den Einfluss auf die Betriebstemperatur feststellen zu können wurden die Messwerte der Thermoelemente T1–T11 gemittelt. Bei Betrachtung der Temperaturverteilung über die Stromdichte ist zu beachten, dass die in diesem Kapitel dargestellten Stacktemperaturen nur einen Mittelwert der gemessenen lokalen Temperaturen (T1-T11) darstellen. Es besteht die Möglichkeit, dass lokal die maximal zulässige Betriebstemperatur überschritten wird. Wie in Abbildung 5-8 (rot gepunktet) zu erkennen, ist das jedoch nur bei sehr hohen Stromdichten der Fall. Für diesen Betriebspunkt liegen die lokalen Temperaturmaxima mit 2,6 K bei  $850\text{ mA cm}^{-2}$  nur geringfügig über der Durchschnittstemperatur und sind für die verwendeten Materialien aufgrund des Sicherheitsfaktors unproblematisch. Die lokalen Temperaturmaxima sind nur bei hohen Stromdichten ( $> 450\text{ mA cm}^{-2}$ ) und damit verbundenen hohen mittleren Temperaturen von knapp  $180\text{ °C}$  von Bedeutung, da die Differenz der maximalen Temperaturen zu den mittleren Temperaturen nur in diesem Bereich lokale Temperaturen oberhalb der Betriebstemperaturgrenze verursachen. Bei niedrigeren Stromdichten ist eher die minimale Temperatur bedeutsam, da es aufgrund des Unterschreitens der optimalen Betriebstemperatur zu niedrigen lokalen Zellspannungen kommen kann. Aufgrund der geringen Temperaturspreizung kann im Folgenden die mittlere Temperatur verwendet werden.

In Abbildung 5-7 ist der Einfluss des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms auf die Temperaturverteilung dargestellt. Die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur beträgt bei allen Volumenstromvariationen  $160\text{ °C}$ . Zusätzlich ist der zu erwartende Temperaturverlauf berechnet worden.



**Abbildung 5-7: Einfluss des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms auf die gemessene Stacktemperatur bei konstanter  $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$  im Reformatbetrieb ( $\lambda_{Ref/Luft}=2/2$ ) im Vergleich mit berechneten Werten (durgezogene Linie)**

In Abbildung 5-7 ist zu erkennen, dass die mittlere Stacktemperatur mit steigendem Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom sinkt. Bei niedrigem Volumenstrom von 1 und 2  $\text{L min}^{-1}$  und einer Stromdichte von 500 bzw. knapp über 600  $\text{mA cm}^{-2}$  überschreitet die mittlere Stacktemperatur die Betriebstemperaturgrenze von 180 °C. Durch Erhöhen des Volumenstroms auf 4 bzw. 6  $\text{L min}^{-1}$ , sinkt das Temperaturniveau insbesondere bei höheren Stromdichten ( $> 450 \text{ mA cm}^{-2}$ ) weiter ab. Die maximale Betriebstemperaturgrenze von 180 °C wird erst bei einer Stromdichte von über 850  $\text{mA cm}^{-2}$  (4  $\text{L min}^{-1}$ ) bzw. 950  $\text{mA cm}^{-2}$  (6  $\text{L min}^{-1}$ ) überschritten. Ein Betrieb in dem optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen 160 und 180 °C ist bei einer konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von 160 °C und einem konstanten Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom von 6  $\text{L min}^{-1}$  in einem Stromdichtebereich von 0 bis 950  $\text{mA cm}^{-2}$  möglich.

Insgesamt lässt sich aus Abbildung 5-7 erwartungsgemäß schließen, dass der steigende Volumenstrom zu einem flacheren Temperaturanstieg führt. Der Grund dafür ist die sinkende Austrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit mit steigendem Volumenstrom. Die in der Brennstoffzelle erzeugte thermische Energie muss vollständig auf ein Wärmeträgermedium übertragen werden. Der durch die Reaktandengase abgeführte

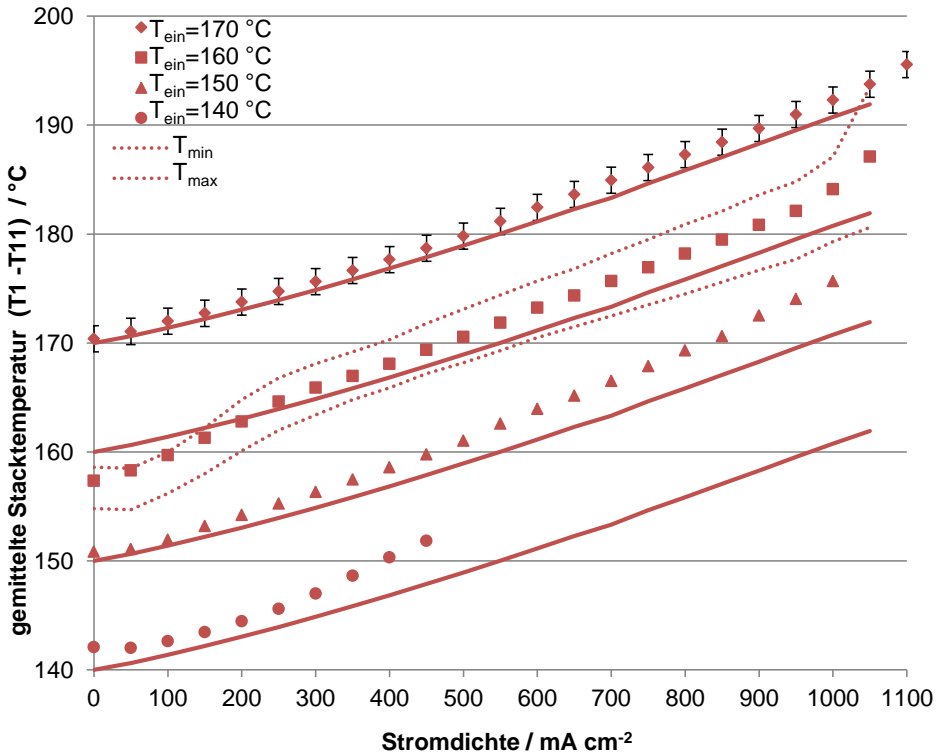
Wärmestrom wird aufgrund des geringen Anteils (< 3 %) vernachlässigt. Der durch das Wärmeträgermedium abgeführte Wärmestrom berechnet sich nach Gleichung (5-1).

$$\dot{Q} = \dot{m} \cdot c_p \cdot (T_{aus} - T_{ein}) \quad (5-1)$$

Davon ausgehend, dass in guter Näherung die spezifische Wärmekapazität ( $c_p=2250\ldots2290 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) konstant ist und ebenso die Eintrittstemperatur des Wärmeträgermediums ( $T_{ein}$ ) als konstant festgelegt wird, muss bei steigendem Massenstrom ( $\dot{m}$ ) des Wärmeträgermediums (und damit verbunden der Volumenstrom) die Austrittstemperatur des Wärmeträgermediums ( $T_{aus}$ ) sinken. Ausgehend von der abzuführenden Wärme aus Abbildung 5-3 kann mit Hilfe der Gleichung (5-1) die Temperaturdifferenz und damit die mittlere Wärmeträgerflüssigkeitstemperatur berechnet werden. Um die Stacktemperatur zu berechnen muss zusätzlich der Temperaturanstieg aufgrund des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf die Wärmeträgerflüssigkeit berücksichtigt werden (vgl. Kapitel 3.4).

Anhand Abbildung 5-7 wird deutlich, dass der berechnete Temperaturverlauf den gemessenen in weiten Teilen abbildet. Die Berechnungen bestätigen, dass aus einer Verringerung des Volumenstroms ein stärkerer Temperaturanstieg mit steigender abzuführender Wärme und damit steigenden Stromdichten resultiert. Der nahezu lineare Temperaturanstieg gilt allerdings nur, solange der abzuführende Wärmestrom linear zunimmt. Dies ist für die bei der Berechnung zugrunde gelegte Stackkennlinie (vgl. Abbildung 5-3) der Fall. Ebenso ist anhand der Berechnung zu erkennen, dass eine weitere Steigerung des Volumenstroms aufgrund der Limitierung ( $7 \text{ L min}^{-1}$ ) durch den Wärmeübergang nur begrenzt möglich ist. Dies ist in Abbildung 5-7 zu erkennen, da eine Volumenstromerhöhung von 4 auf  $6 \text{ L min}^{-1}$  fast keine niedrigeren Stacktemperaturen zur Folge hat. Eine weitere Erhöhung des Volumenstroms würde die Stacktemperaturen nicht weiter senken solange weiterhin laminare Strömung vorliegt. Die bei niedrigen Volumenströmen ( $1$  und  $2 \text{ L min}^{-1}$ ) vor allem bei höheren Stromdichten deutlich steileren gemessenen Temperaturverläufe sind auf die nicht mehr ausreichende Wärmeabfuhr aufgrund des zu geringen Volumenstromes zurückzuführen. Ein ausreichender Wärmeübergang liegt in diesen Bereichen nicht mehr vor.

Insgesamt ist ein Betrieb bei einem Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom von  $4 \text{ L min}^{-1}$  ausreichend, um den HT-PEFC-Stack im gesamten Betriebsbereich zu temperieren. Ein Reformatbetrieb bei einer Stromdichte von  $950 \text{ mA cm}^{-2}$  ist aufgrund der damit verbundenen niedrigen mittleren Zellspannung unter  $0,4 \text{ V}$  (vgl. Abbildung 5-3) nicht empfehlenswert. Für diesen Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom ist der Einfluss der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur in Abbildung 5-8 dargestellt. Mit Hilfe der Gleichung (5-1) und unter Berücksichtigung des Wärmeübergangs kann für die Eintrittstemperaturvariation ebenfalls die Stacktemperatur rechnerisch abgeschätzt werden, um den Verlauf der gemessenen Temperaturverläufe zu bestätigen. Die Ergebnisse der Berechnungen sind ebenfalls in Abbildung 5-8 dargestellt.



**Abbildung 5-8: Gemessener (Punkte) und berechneter Einfluss (durchgezogene Linie) der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur auf die mittlere Stacktemperatur bei  $\dot{V}_{WT,\text{ein}} = 4 \text{ L min}^{-1}$  im Reformatbetrieb sowie  $T_{\text{min}}$  und  $T_{\text{max}}$  für  $T_{\text{ein}} = 160^{\circ}\text{C}$**

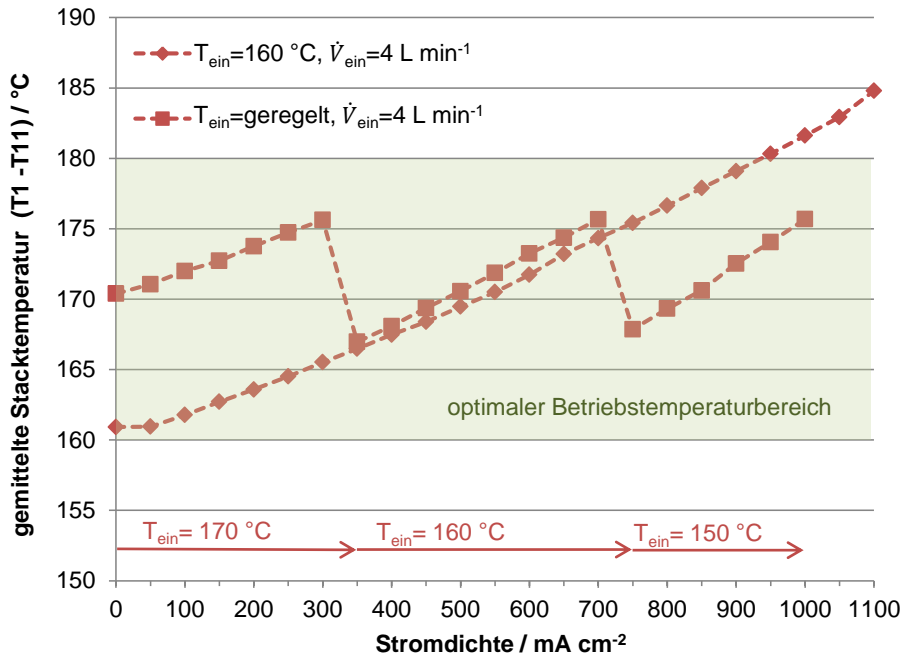
Deutlich zu erkennen ist, dass mit steigender Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur das mittlere Stacktemperaturniveau steigt. Durch eine Erhöhung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur um 10 K steigt das Temperaturniveau ebenfalls um etwa 10 K an. Des Weiteren wird deutlich, dass eine Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von  $140^{\circ}\text{C}$  zu niedrig für den Reformatbetrieb ist. Hintergrund ist, dass das resultierende niedrige Temperaturniveau ( $142$  bis  $152^{\circ}\text{C}$ ) die CO-Toleranz herabsetzt, womit ein Betrieb bei einer Stromdichte über  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  nicht mehr möglich ist. Lücke [22, p. 49] hat gezeigt, dass die Zellspannungsverluste im Betriebspunkt  $400 \text{ mA cm}^{-2}$  um den Faktor 30 steigen, wenn die Betriebstemperatur von  $180$  auf  $140^{\circ}\text{C}$  abgesenkt wird. Bei einer Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von  $170^{\circ}\text{C}$  ist zwar im niedrigen Stromdichtebereich das Temperaturniveau vergleichsweise hoch, allerdings überschreitet die mittlere Stacktemperatur die maximal zulässige Betriebstemperatur bei Stromdichten von über  $500 \text{ mA cm}^{-2}$ . Ein Stackbetrieb ist bei einer Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von  $150^{\circ}\text{C}$  bei Stromdichten von über  $1000 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich, jedoch ist im Stromdichtebereich unter  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  die Stacktemperatur geringer als  $160^{\circ}\text{C}$ . Als am geeignetsten für den hier untersuchten Eintrittsvolumenstrom von  $4 \text{ L min}^{-1}$  erweist sich ein Betrieb bei einer Eintrittstemperatur von  $160^{\circ}\text{C}$ , da hier ein Betrieb bis zu einer Stromdichte von

850 mA cm<sup>-2</sup> möglich ist. Die Abweichung der gemessenen Temperatur von der Eintrittstemperatur (160 und 140 °C) der Wärmeträgerflüssigkeit bei 0 mA cm<sup>-2</sup> resultiert aus der in Kapitel 4.2 beschriebenen verkürzten Verweildauer bei offener Zellspannung. Dadurch wird in diesem Betriebspunkt kein stationärer Zustand bezüglich der Temperatur erreicht. Die Temperatur ist folglich von dem Betriebszustand vor Beginn der Messung beeinflusst.

Abbildung 5-8 zeigt, dass die berechneten Temperaturverläufe die experimentell bestimmten Temperaturverläufe abbilden. Sowohl die Steigung des Temperaturanstiegs über der Stromdichte als auch das Temperaturniveau stimmen mit den gemessenen Verläufen überein. Im Vergleich mit der Variation des Volumenstroms ist zu erkennen, dass die Temperaturanstiege ebenfalls nahezu linear verlaufen, die Steigung allerdings konstant bleibt und die Temperaturverläufe parallel mit steigender Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit verschoben werden. Eine Erklärung ist in der der Berechnung zugrunde gelegten Gleichung (5-1) zu finden. Da der Massenstrom konstant bleibt ändert sich die Temperaturdifferenz nur mit der abzuführenden Wärme. Diese ist jedoch unabhängig von der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit. Somit weisen die Temperaturverläufe über der Stromdichte die gleiche Steigung auf, werden aber durch die Eintrittstemperatur parallel verschoben.

### 5.1.4 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Das in diesem Abschnitt untersuchte Kühlkonzept eignet sich sehr gut, um Stacks der kW-Klasse zu temperieren. Aufgrund der aktiven Kühlung jeder elektrochemisch aktiven Zelle und des in die Kathodenplatte rückseitig integrierten Wärmeträgerflüssigkeits-flowfields sind sowohl die Temperaturdifferenzen von Zelle zu Zelle als auch die in vertikaler Richtung über die aktive Fläche gering. Das Temperaturniveau lässt sich mit Hilfe einer konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur und des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms einstellen. Bei einem Betrieb im Stromdichtebereich von 0 bis 900 mA cm<sup>-2</sup> ist bei einer Eintrittstemperatur von 160 °C und einem Volumenstrom von 4 L min<sup>-1</sup> ein Betrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich von 160 bis 180 °C möglich (vgl. Abbildung 5-9). Wie in Abbildung 5-9 zu erkennen ist, besteht für einen vorwiegend dynamischen Betrieb die Möglichkeit, die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur zu regeln, um den Stack im gesamten Betriebsbereich von 0 bis über 1000 mA cm<sup>-2</sup> optimal zu temperieren.



**Abbildung 5-9: Vergleich geregelte und ungeregelte Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen**

Wie die Untersuchungen in diesem Kapitel gezeigt haben, gibt es zwei Möglichkeiten die Stacktemperatur zu regeln. Diese sind der Volumenstrom und die Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit. Eine Regelung ist jedoch nur erforderlich wenn ein Stackbetrieb in Stromdichtebereichen oberhalb  $900 \text{ mA cm}^{-2}$  angestrebt wird. Wie die Messungen und Berechnungen gezeigt haben, lässt sich mit Hilfe der Volumenstromerhöhung der Betriebsbereich nur bis etwa  $1000 \text{ mA cm}^{-2}$  erweitern, da der Wärmeübergang limitiert ist. Für einen Betrieb bei hohen Stromdichten ist die Regelung der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit besser geeignet. Prinzipiell kann damit das Stacktemperaturniveau im optimalen Betriebstemperaturbereich gehalten werden, allerdings steigen durch eine Absenkung der Eintrittstemperatur die Temperaturdifferenzen über der aktiven Fläche an. Dies kann bei Eintrittstemperaturen unter  $100 ^\circ\text{C}$  dazu führen, dass lokal die Stacktemperatur ebenfalls unter  $100 ^\circ\text{C}$  beträgt. Insgesamt ist mit diesem Kühlkonzept ein Betrieb mit ungeregelten, konstanten Eintrittsbedingungen ausreichend, um einen Reformatbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich über den für die meisten Anwendungen ausreichenden Stromdichtebereich sicherzustellen.

Eine Abschätzung (Vgl. Tabelle A 10) hat ergeben, dass die Leistungsaufnahme der Pumpe des Kühlkreislaufes mit maximal  $12 \text{ W}$  bei einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  deutlich unter  $10 \%$  der erzeugten Stackleistung (für  $j > 100 \text{ mA cm}^{-2}$ ) liegt.



Neben den genannten Vorteilen gibt es jedoch noch Herausforderungen, die für den zukünftigen Einsatz gelöst werden müssen. Wie in Kapitel 5.1.1.1 beschrieben, ist zum Betrieb des Stacks eine Abdichtung an verschiedenen Stellen im Stack notwendig. Die dauerhafte Gewährleistung einer sicheren Abdichtung stellte sich während des Testbetriebes als problematisch heraus. Durch Eindringen von Wärmeträgerflüssigkeit in Bereiche der MEA kann es zu irreversibler Schädigung des HT-PEFC-Stacks kommen [116]. Konstruktive Änderungen am gesamten Dichtungskonzept könnten dieses Problem jedoch verringern. Alternativ bietet sich ein Kühlsystem mit vollständig gekapselten Kühlstrukturen an. Ein solches Kühlkonzept wird in Kapitel 5.2 vorgestellt.

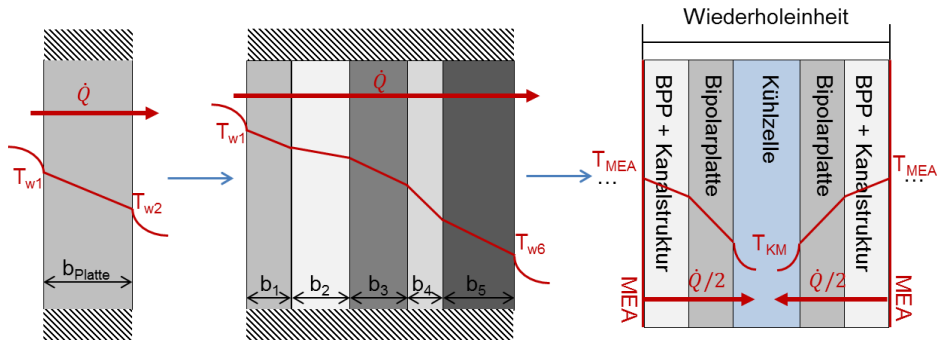
### **5.2 Interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen**

Wie aus Abschnitt 5.1 hervorgeht, ist eine dauerhaft nicht sichere Abdichtung des internen Kühlkreislaufes der maßgebende Grund, der einem Einsatz in einem Stack der kW-Klasse entgegensteht. In diesem Abschnitt werden daher zwei wesentliche Veränderungen zu dem in Abschnitt 5.1 eingeführten Kühlkonzept untersucht. Zum einen soll die Voraussetzung geschaffen werden, die Dichtungsproblematik durch den Einsatz von gekapselten Kühlzellen zu minimieren, zum anderen soll untersucht werden ob es notwendig ist, jede Zelle zu kühlen.

#### **5.2.1 Ansatz zur Berechnung der Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle**

Wie die Literatur zeigt, ist es bei einer aktiven internen Kühlung nicht immer notwendig, jede Zelle zu kühlen [33, 53]. Durch die verringerte Anzahl der Kühlzellen besteht die Möglichkeit, die volumetrische und gravimetrische Leistungsdichte des Stacks zu steigern. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle steigt, da die Kühlzellenzahl geringer als die Zahl der elektrochemischen Zellen ist. Infolgedessen steigt der von einer Kühlzelle abzuführende Wärmestrom. Die dadurch erhöhte Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle muss vorab abgeschätzt werden, damit es nicht zu unzulässig hohen Betriebstemperaturen im Stack kommen kann. Aus diesem Grund wird im Folgenden eine Berechnungsmethode vorgestellt, die es ermöglicht, die maximale Temperaturdifferenz zwischen der am weitesten von der Wärmesenke (Kühlzelle) entfernten Wärmequelle (MEA) und der Wärmesenke zu bestimmen.

Das Berechnungsmodell soll angelehnt an das Stackkonzept des in Tabelle 3-1 gezeigten Brennstoffzellenstacks modelliert werden. Vereinfacht soll die normal zur Membranebene auftretende Temperaturdifferenz (von Zelle zu Zelle) im Brennstoffzellenstack in Form eines stationären Wärmeübergangs durch mehrere ebene Platten adaptiert werden. Die Abstrahierung ist in Abbildung 5-10 dargestellt.



**Abbildung 5-10: Abstrahierung der Brennstoffzelle durch ebene Platten; links: Wärmedurchgang durch eine Platte; mittig: Wärmedurchgang durch mehrere ebene Platten; rechts Wärmedurchgang bei einem Brennstoffzellenmodell**

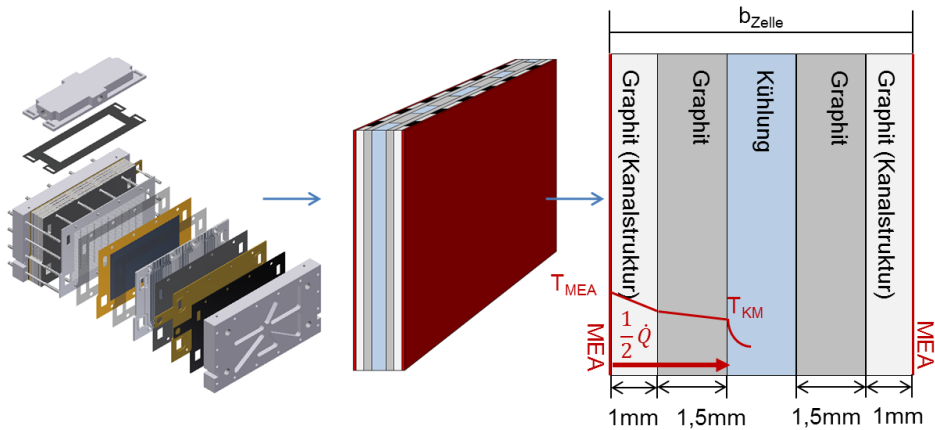
Das Berechnungsmodell berücksichtigt im Wesentlichen 4 Stackkomponenten, die durch ebene Platten abstrahiert werden. Dabei handelt es sich um eine Platte aus Bipolarplattenmaterial, eine Platte bei der eine Mischung aus Kanalstrukturen und Bipolarplattenmaterial berücksichtigt wird und eine Platte aus MEA-Materialien. Die in der MEA erzeugte Wärmeleistung wird als Wärmequelle, die Kühlzelle als Wärmesenke modelliert.

Um mit diesem Ansatz die Temperaturdifferenz analytisch bestimmen zu können, müssen einige weitere Vereinfachungen und Annahmen getroffen werden. Diese sind:

- Aufgrund der Annahme einer idealen Isolierung wird die Wärmeabfuhr durch Strahlung und freie Konvektion an der Oberfläche nicht berücksichtigt.
- Die MEAs des Brennstoffzellenstacks werden als homogene Wärmequellen angenommen.
- Die gesamte Wärme wird vollständig mittels der aktiven Kühlung (Wärmesenke) (vgl. Abbildung 5-10) abgeführt.
- Die Wärmeabfuhr über die Reaktanten wird aufgrund des geringen Anteils (vgl. Abbildung 3-4) vernachlässigt.
- Der laterale Temperaturgradient in der Wärmesenke existiert in der Modellannahme nicht. Dieser ist bei vergleichbaren Geometrien mit  $< 5$  K entlang der Strömungsrichtung des Kühlmediums gering [35, 110].
- Der Wärmewiderstand zwischen den einzelnen Baugruppen / Materialien wird aufgrund der geringen Kontaktwiderstände nicht berücksichtigt.
- Werden mehrere Wärmequellen von einer Wärmesenke gekühlt, wird angenommen, dass die produzierte Wärme aufsummiert wird und an der am weitesten entfernten Wärmequelle entsteht.
- Jedes Bauteil weist eine konstante Wärmeleitfähigkeit und damit einen linearen Temperaturgradienten auf.
- Bereiche der Bipolarplatten mit Reaktandenkanalstrukturen werden nur zur Hälfte berücksichtigt, da das Kanal-zu-Steg-Verhältnis 1 beträgt.

Bei dieser Konfiguration ist allerdings nicht berücksichtigt, dass der Stack durch das Weglassen von Kühlzellen insgesamt dünner ausgeführt werden kann, was zu einer Verringerung der Temperaturdifferenz führen würde, da zur Integration der Kühlstrukturen und deren Dichtung bei jeder Zelle die Bipolarplatten zweigeteilt ausgeführt werden müssen. Durch das Modell eines unendlich ausgedehnten Brennstoffzellenstapels und den adiabaten Randbedingungen, kann die in der Realität zu beobachtende Zunahme der Temperatur zur Mitte des Stacks nicht berücksichtigt werden. Auch das Zusammenfassen von mehreren Wärmequellen zu einer am weitesten von der Wärmesenke entfernten Wärmequelle führt zu einer Vernachlässigung der Wechselwirkung zwischen den wärmeerzeugenden Bereichen des Stacks. Aufgrund der getroffenen Annahmen und Vereinfachungen stellt die so ermittelte Temperaturdifferenz eine Abschätzung zur sicheren Seite dar. Für den realen Betrieb sind also geringere Temperaturdifferenzen zu erwarten. Voraussetzung ist jedoch, dass die Randbedingungen gleich bleiben. Eine vollständige Wärmeabfuhr durch die jeweilige Kühlung ist also zu gewährleisten.

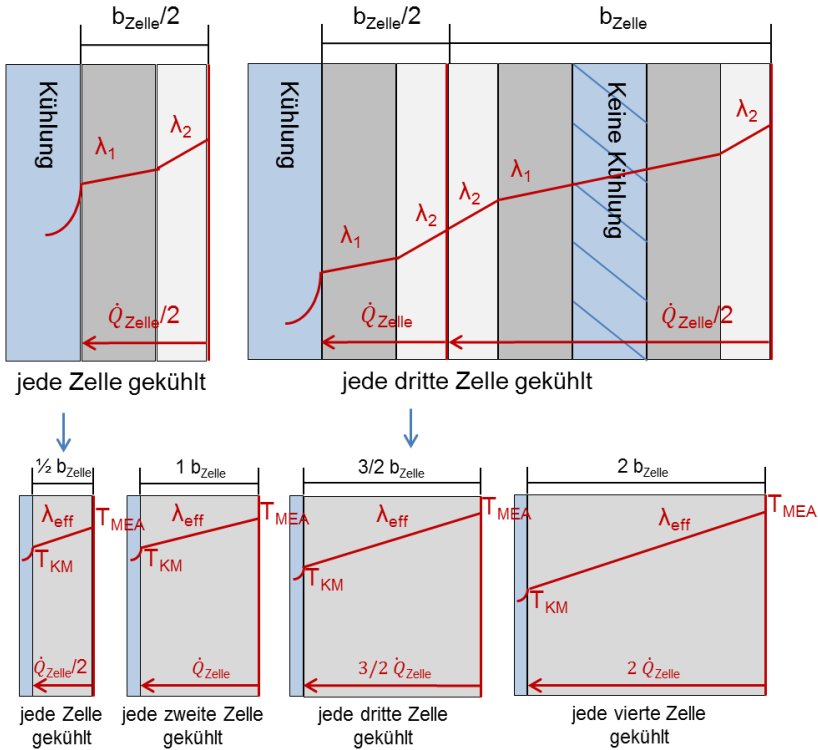
Für den hier untersuchten HT-PEFC-Stack (vgl. Tabelle 3-1) mit graphitischen Bipolarplatten kann mit Hilfe der Fourier'schen Gleichung (3-19) und dem in Abbildung 5-11 gezeigten Stackmodell die maximal zu erwartende Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle berechnet werden (Gleichung (5-2)). Die Herleitung ist im Anhang zu finden.



**Abbildung 5-11: Stackmodell zur Berechnung der Temperaturdifferenz in der Zelle**

$$\Delta T = \frac{\frac{1}{2} \dot{Q}_{Zelle} \cdot \frac{1}{2} b_{Zelle}}{\lambda_{eff} \cdot A_{Zelle}} \quad (5-2)$$

Das Stackmodell zur Berechnung der maximalen Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle bei einer Kühlung von nur jeder n-ten Zelle ist in Abbildung 5-12 dargestellt.



**Abbildung 5-12: Stackmodell zur Berechnung der maximalen Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle bei einer Kühlung von nur jeder n-ten Zelle**

Wie in Abbildung 5-12 zu erkennen ist, ergibt sich damit für Gleichung (5-2) die Erweiterung zur Berechnung der Temperaturdifferenz nach Gleichung (5-3). Eine detaillierte Herleitung ist im Anhang zu finden.  $N_{gek.Zellen}$  bezeichnet dabei die Anzahl der pro Kühlzelle gekühlten Zellen.

$$\Delta T = (T_{MEA} - T_{KM}) = \frac{\dot{Q}_{Zelle} \cdot b_{Zelle}}{\lambda_{eff} \cdot A_{Zelle}} \cdot \left( \frac{N_{gek.Zellen}}{2} \right)^2 \quad (5-3)$$

Zur Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit der Zelle ( $\lambda_{eff}$ ) aus den Leitfähigkeiten der verwendeten Materialien ( $\lambda_i$ ) werden in der Literatur [94, 117] oder vom Hersteller [97, 112, 118] gegebene Werte verwendet. Für die Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit einer Zelle des hier abstrahierten Stacks (vgl. Tabelle 3-1) sind Wärmeleitfähigkeiten der Komponenten und deren Wandstärken in Tabelle 5-3 aufgeführt.

**Tabelle 5-3: Werte zur Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit**

Material	Wärmeleitfähigkeit $\lambda_i$ / W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	Dicke / mm
Graphit (fest) [97]	20	1,5
Graphit (Kanalstruktur) [97]	10	1
GDL [119]	1,6	0,2
Membran (PBI) [120]	0,4	0,03

Damit folgt für die effektive Wärmeleitfähigkeit einer Zelle:

$$\lambda = b_{\text{Zelle}} \cdot \left( \sum_i \frac{b_i}{\lambda_i} \right)^{-1} \quad (5-4)$$

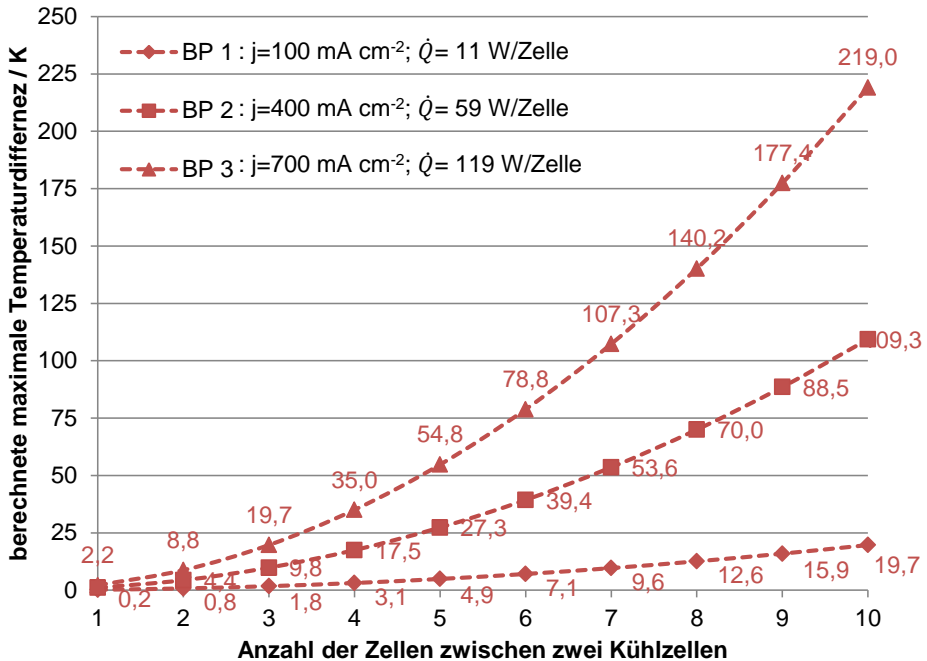
$$= b_{\text{Zelle}} \cdot \left( \frac{2 \cdot 0,0015}{20} + \frac{2 \cdot 0,001}{10} + \frac{2 \cdot 2 \cdot 10^{-4}}{1,7} + \frac{3 \cdot 10^{-5}}{0,4} \right)^{-1} \frac{W}{m^2 \cdot K} = 8,2 \frac{W}{m \cdot K}$$

Zur Berechnung der Temperaturdifferenz ist es notwendig, den Betrag des abzuführenden Wärmestroms pro Zelle ( $\dot{Q}_{\text{Zelle}}$ ) zu kennen. Dieser kann mit Hilfe der Energiebilanz aus Kapitel 3.3 berechnet werden. Für drei Betriebspunkte ist in Tabelle 5-4 der abzuführende Wärmestrom pro Zelle in Tabelle 5-4 aufgeführt.

**Tabelle 5-4: Abzuführender Wärmestrom pro Zelle für 3 Betriebspunkte**

Betriebspunkt	j / mA cm <sup>-2</sup>	P <sub>el.</sub> (Zelle) / W	$\dot{Q}$ (Zelle) / W
BP 1	100	13,4	11
BP 2	400	41	59
BP 3	700	56	119

Für die wärmeübertragende Fläche ( $A_{\text{Zelle}}$ ) wird davon ausgegangen, dass die Stege und Kanäle im Kühlbereich gleichverteilt sind und sich daraus eine Fläche von  $A_{\text{aktiv}}/2=100 \text{ cm}^2$  ergibt. Die Breite einer Zelle wurde mit 6 mm als konstant angenommen. Eingesetzt in Gleichung (5-3) kann die maximale Temperaturdifferenz im Stack für eine variable Anzahl an durch eine Kühlzelle gekühlte Zellen ( $N_{\text{gek.Zellen}}$ ) berechnet werden. Die berechnete Temperaturdifferenz ist die Differenz zwischen der Temperatur an der Wärmesenke (Kühlung) und der am weitesten von der Wärmesenke entfernten Wärmequelle (MEA). Die Ergebnisse für die drei gewählten Betriebspunkte sind in Abbildung 5-13 dargestellt.



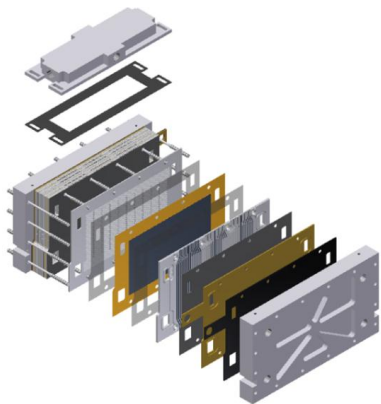
**Abbildung 5-13: Maximale Temperaturdifferenz im Stack für drei Betriebspunkte**

Anhand von Abbildung 5-13 ist gut zu erkennen, dass die berechnete Temperaturdifferenz sowohl mit steigender Stromdichte als auch mit größer werdender Anzahl an Zellen zwischen zwei Kühlzellen steigt. Bei steigender Stromdichte muss von jeder Kühlzelle mehr Wärme pro Zeiteinheit abgeführt werden. Der Abstand zwischen Wärmesenke und Wärmequelle, zwischen dem Wärmeleitung stattfindet, bleibt konstant. Bei steigender Anzahl der von einer Kühlzelle zu kühlenden elektrochemischen Zellen steigt neben dem abzuführenden Wärmestrom pro Kühlzelle auch die Strecke über die die Wärmeleitung stattfindet. Aus Abbildung 5-13 geht hervor, dass im Betriebspunkt 3 bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  und einem abzuführenden Wärmestrom von  $119 \text{ W}$  pro Zelle die Temperaturdifferenz im Stack  $35 \text{ K}$  beträgt, wenn nur jede vierte Zelle gekühlt wird. Dies würde bedeuten, dass bei einer Arbeitstemperatur von  $160 \text{ °C}$  eine maximale Stacktemperatur von  $195 \text{ °C}$  erreicht wird und damit deutlich über der Betriebstemperaturgrenze von  $180 \text{ °C}$  liegt [96]. Insgesamt lässt sich anhand der Berechnungen sagen, dass eine Kühlung von nur jeder vierten Zelle von der Stromdichte limitiert wird. Die Ergebnisse der Rechnungen zeigen, dass eine Kühlung von nur jeder dritten Zelle möglich ist, da die Temperaturdifferenz für alle Betriebszustände mit maximal  $19,7 \text{ K}$  unterhalb der Grenze von  $20 \text{ K}$  liegt. Bei unveränderten Betriebsbedingungen wäre auch eine Kühlung von nur jeder vierten Zelle möglich, wenn die maximale Stromdichte und damit die Leistung des Stacks begrenzt würde. Alternativ könnte auch eine Regelung der Eintrittstemperatur des Kühlmedienstroms erfolgen, wodurch ein Absenken der Maximaltemperatur erreicht werden kann, wobei sich die Temperaturdifferenz dahingegen nicht verringern würde.

5.2.2 Validierung der Auslegung

Anhand des bisher verwendeten Stackkonzeptes mit einer aktiven MEA-Fläche von 200 cm<sup>2</sup> soll die Abschätzung aus Abschnitt 5.2.1 validiert werden. Der Stackaufbau orientiert sich an dem in Kapitel 5.1.1.1 vorgestellten Konzept. Die wichtigsten Randbedingungen des hier untersuchten Stacks sind in Tabelle 5-5 aufgelistet.

Tabelle 5-5: Aufbau und Betriebsbedingungen des zur Validierung untersuchten HT-PEFC-Stacks

	Zellen	9
	Aktive MEA-Fläche	200 cm <sup>2</sup>
	MEA	BASF Celtec® P1000
	Bipolarplatten	Graphit/Phenolharz – Komposit
	Kühlung	4 Kühlzellen (Rückseite Kathodenplatte)
	Wärmeträgermedium	Fragoltherm S-15 A
	T <sub>WT,ein</sub>	160 °C
	Therm. Isolation	20-30 mm Silikonschaum
	Kathodengas	Luft
	Anodengas	Reformat (42 vol.% H <sub>2</sub> , 57 vol.% N <sub>2</sub> , 1 vol.% CO)
Stöchiometrie		$\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$
Gas-Eintrittstemp.		160 °C

Anstatt mit gekapselten Kühlzellen wird für die Vorauslegung der 9-zellige Stack mit Hilfe der in die Rückseite der Kathodenbipolarplatte integrierten Kühlkanäle temperiert (vgl. Kapitel 5.1.1.1). Die Anordnung der Kühlstrukturen erfolgt jeweils nach Zellpaketen mit drei elektrochemisch aktiven Zellen. Die Temperaturmessung erfolgt nach dem in Kapitel 5.1.1.2 beschriebenen Prinzip. Die Anordnung der Thermoelemente sowie die Anordnung der in den Kathodenplatten integrierten Kanalstrukturen ist in Abbildung 5-14 dargestellt.

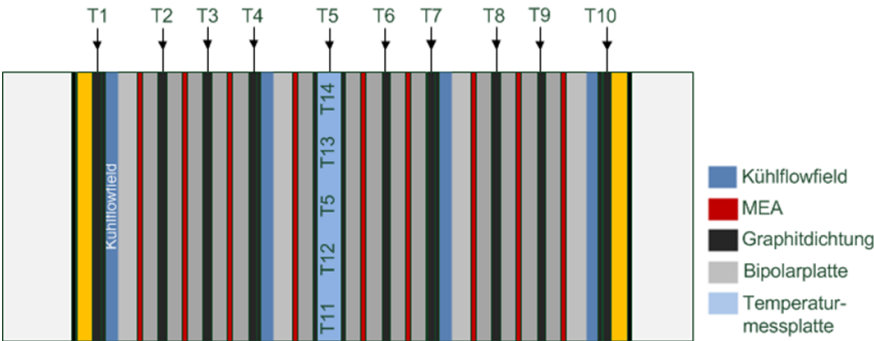
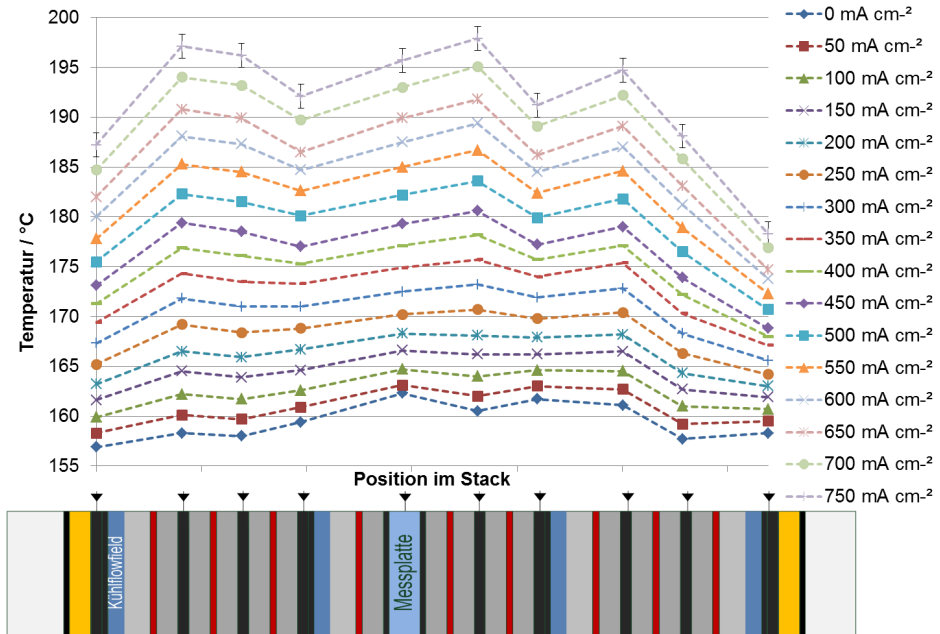


Abbildung 5-14: Anordnung der Thermoelemente sowie die Anordnung der in den Kathodenplatten integrierten Kanalstrukturen

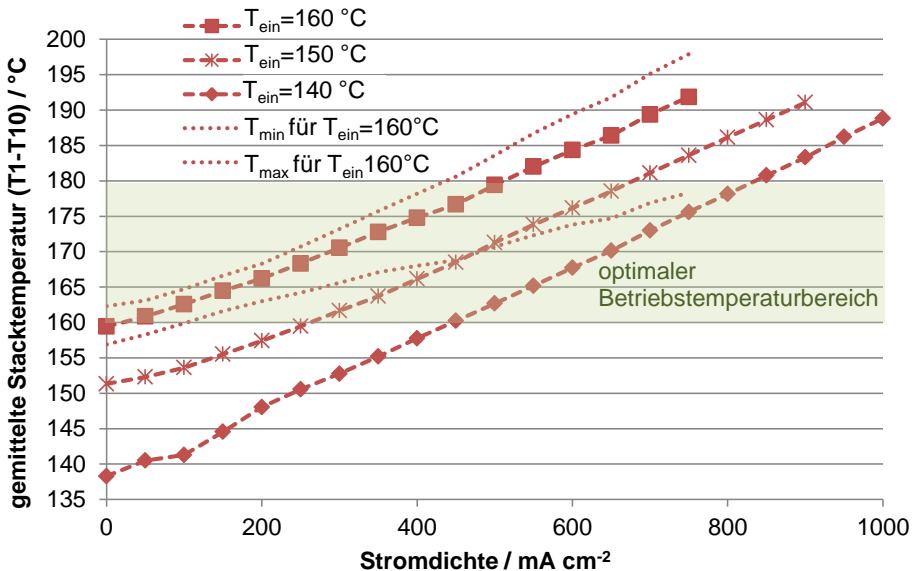
Die bei einem Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom von  $2 \text{ L min}^{-1}$  zur Validierung der Auslegung bestimmte Temperaturverteilung ist in Abbildung 5-15 dargestellt.



**Abbildung 5-15: Gemessene Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei  $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=2 \text{ L min}^{-1}$**

Anhand Abbildung 5-15 ist zu erkennen, dass die maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle  $18,2 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt. Ein Betrieb des Stacks ist bis zu einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich, ohne dass die Betriebstemperaturgrenze von  $180 \text{ °C}$  überschritten wird. Um den Stack bei höheren Stromdichten zu betreiben, kann die Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit abgesenkt werden oder der Volumenstrom erhöht werden. Durch Absenken der Eintrittstemperatur ergibt sich der in Abbildung 5-16 gezeigte gemittelte Temperaturverlauf ( $T_1 - T_{10}$ ).



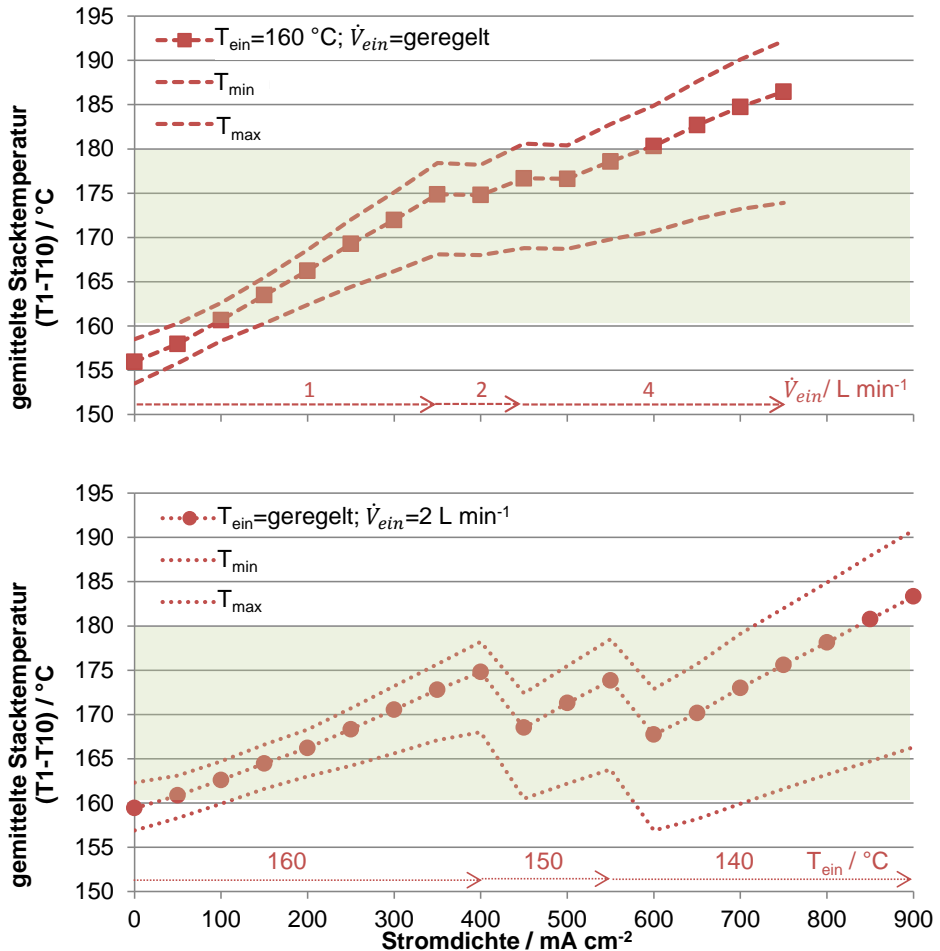


**Abbildung 5-16:** Einfluss der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur auf die mittlere Stacktemperatur bei  $\dot{V}_{\text{WT,ein}}=2\text{ L min}^{-1}$  und  $T_{\text{min}}$  und  $T_{\text{max}}$  für  $T_{\text{WT,ein}}=160\text{ °C}$

Wie in Abbildung 5-16 zu erkennen ist, ist ein Betrieb bis zu einer Stromdichte von  $800\text{ mA cm}^{-2}$  möglich, wenn die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur ab einer Stromdichte von  $450\text{ mA cm}^{-2}$  auf  $140\text{ °C}$  abgesenkt wird. Allerdings ist zu beachten, dass lokal die Temperaturen im Stack schon bei niedrigerer Stromdichte die Betriebstemperaturgrenze überschreiten können, wie  $T_{\text{min}}$  und  $T_{\text{max}}$  für  $T_{\text{ein}}=160\text{ °C}$  zeigen. Für  $T_{\text{ein}}=140\text{ °C}$  wird ab einer Stromdichte von  $750\text{ mA cm}^{-2}$  lokal die Betriebstemperaturgrenze überschritten.

### 5.2.3 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Das hier untersuchte Kühlkonzept eignet sich, um HT-PEFC-Stacks im Reformatbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $450\text{ mA cm}^{-2}$  mit konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen im optimalen Betriebstemperaturbereich zu temperieren. Der Betrieb bei höheren Stromdichten kann nur durch ein Absenken der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur gewährleistet werden. Eine Regelung des Volumenstroms ist bei diesem Kühlkonzept nicht sinnvoll, wie Abbildung 5-17 zeigt.



**Abbildung 5-17: Einfluss der Regelung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen auf den Temperaturverlauf; oben:  $T_{\text{WT,ein}} = 160 \text{ °C}$  und Volumenstrom geregelt; unten  $\dot{V}_{\text{WT,ein}} = 2 \text{ L min}^{-1}$  und Eintrittstemperatur geregelt**

Eine Regelung des Volumenstroms erweitert den Betriebsbereich, bei dem die maximale Betriebstemperaturgrenze von 180 °C nicht überschritten wird, nicht. Eine Erhöhung des Volumenstroms kann die Stacktemperatur nicht weiter absenken, da der Wärmeübergang auf die Wärmeträgerflüssigkeit limitiert ist. Nur durch die Regelung der Eintrittstemperatur lässt sich der Betriebsbereich auf eine Stromdichte von 700 mA cm<sup>-2</sup> erweitern. Dadurch erhöht sich allerdings die Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche. Im Betriebspunkt 700 mA cm<sup>-2</sup> beträgt die maximale Temperaturdifferenz 9,4 K bei einer Regelung der Eintrittstemperatur auf 140 °C und 8,3 K bei einer Regelung des Volumenstroms auf 4 L min<sup>-1</sup>.

Insgesamt ist bei diesem Kühlkonzept ein unregelter Betrieb bis zu einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Eine Regelung des Volumenstroms kann den Betriebsbereich aufgrund des limitierten Wärmeübergangs nicht erweitern. Nur durch die Regelung der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit ist eine Erweiterung des Betriebsbereichs auf  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Der hier untersuchte HT-PEFC-Stack wurde allerdings ohne gekapselte Kühlzellen betrieben. Für einen Stack der kW-Klasse sollten die an der Rückseite der Kathodenbipolarplatte gekühlten Bereiche durch gekapselte Kühlzellen ersetzt werden. Andernfalls würde die in Kapitel 5.1 diskutierte Dichtungsproblematik weiterhin bestehen.

### 5.3 Externe Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mit Heatpipe-Unterstützung

Ein weiteres Wärmeträgerflüssigkeitskühlkonzept, bei dem unter anderem die Dichtungsproblematik in nichtkritische Stackbereiche verlagert wird, ist die externe aktive Kühlung. Wie in Kapitel 2.2 beschrieben, limitiert eine externe Kühlung aufgrund der begrenzten Wärmeleitfähigkeit der verwendeten Stackmaterialien den Durchmesser der aktiven MEA-Fläche. Um HT-PEFC-Stacks der kW-Klasse extern kühlen zu können besteht die Möglichkeit, Heatpipes zur Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit zu integrieren. Kapitel 3.5 behandelt daher die Grundlagen zur Funktionsweise von Heatpipes. Im Folgenden wird eine Stackauslegung mittels 3D-CFD-Simulationen durchgeführt. Dabei wird ein extern temperierter HT-PEFC-Stack mit 10 Zellen und einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  modelliert und untersucht. Anschließend wird der Stack experimentell untersucht und charakterisiert. Teile dieses Kapitels sind vorab im *Journal of Fuel Cell Science* veröffentlicht worden [121].

#### 5.3.1 Auslegung einer Heatpipe-unterstützten Kühlung mittels CFD

Um die prinzipielle Nutzbarkeit von Heatpipes zur Erhöhung des Wärmetransports in einer experimentellen Untersuchung zu bestätigen, soll der in Kapitel 5.1 beschriebene Stack mit einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  und 10 Zellen modifiziert werden. Dabei soll die interne, integrierte Wärmeträgerflüssigkeitskühlung durch eine externe Wärmeabfuhr mittels Wärmeträgerflüssigkeit ersetzt werden. Die Heatpipes erhöhen die Wärmeabfuhr an den externen Kühlbereich soweit, dass eine ausreichende Kühlung der aktiven Fläche gewährleistet wird. Zum Einsatz kommen kommerzielle Heatpipes der Firma Quick-Ohm [122]. Der kleinste serienmäßig zu beziehende Durchmesser der zylindrischen Heatpipes beträgt 3 mm. Damit das Stackvolumen möglichst gering bleibt, wird dieser Durchmesser im Folgenden verwendet. Die Heatpipes werden mittels separater Kühlzellen in die bestehende Stackstruktur integriert. Dazu werden die Heatpipes in Graphithalbschalen eingelassen, anschließend bei der Assemblierung des Stacks an den vorgesehenen Positionen positioniert und thermisch kontaktiert. Das in Kapitel 5.2.1 vorgestellte Konzept der Kühlung von nur jeder dritten Zelle wird ebenfalls adaptiert, indem insgesamt drei Kühlzellen in dem 10-zelligen Stack verbaut werden sollen. Mit Hilfe von CFD-Simulationen soll im Folgenden gezeigt werden, dass die Wärmeabfuhr ausreichend und

die Temperaturverteilung auf der aktiven Fläche angemessen homogen ist. Die Randbedingungen zur Stackauslegung sind in Tabelle 5-6 zusammengefasst.

**Tabelle 5-6: Randbedingungen zur Stackauslegung der externen Kühlung**

Zellenzahl	10
Aktive MEA-Fläche / cm <sup>2</sup>	200 (pro Zelle)
Reaktandengase	Luft/ Reformat (42 Vol.% H <sub>2</sub> , 57 Vol.% N <sub>2</sub> , 1 Vol.% CO)
Wärmeträgerflüssigkeit	Fragoltherm S-15-A
Wärmetransport aus dem Stack	3 Heatpipe-Kühlzellen
Heatpipes	Zylindrisch, d <sub>a</sub> =3 mm, QY-SHP-D3-200SA [122]
Thermische Isolierung	Ideal isoliert (adiabat)

#### 5.3.1.1 Modellbildung

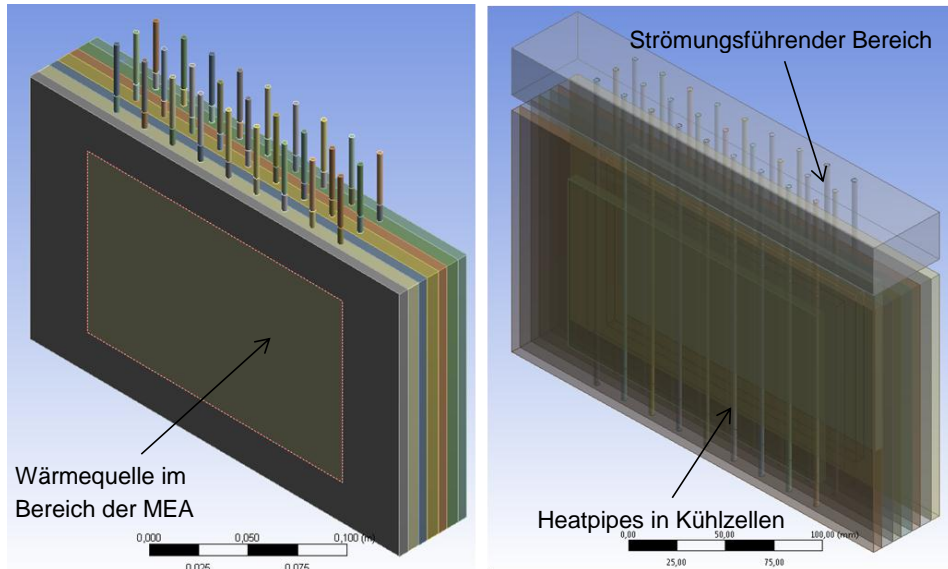
Die Heatpipes können zur vereinfachten Simulation als Zylinder mit einer sehr hohen Wärmeleitfähigkeit von 50000 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup> angenähert werden [123]. Für die in diesem Kapitel vorgestellte Simulation wird die Wärmeleitfähigkeit auf 40000 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup> festgelegt. Dies korrespondiert mit der Angabe, dass die Wärmeleitfähigkeit im Vergleich zu Kupfer um den Faktor 100 bis 10000 größer ist [100]. Das Stackmodell wird angelehnt an den in Kapitel 5.1 beschriebenen Stack mit 200 cm<sup>2</sup> aktiver Fläche modelliert. Dies hat den Vorteil, dass Komponenten wie MEAs, Dichtungen, Bipolarplatten und Endplatten bei einer experimentellen Untersuchung weiter verwendet werden können. Außerdem kann auf Daten der Stacktests zurückgegriffen werden. Die Wärmeerzeugung wird als homogen verteilte Wärmequelle angenähert. Der Betrag des erzeugten Wärmestroms kann variiert werden und wird mit der in Kapitel 3.3.1 vorgestellten Energiebilanz berechnet. Die sich für die Simulation abhängig von der Stromdichte ergebenden Betriebspunkte und der damit verbundene abzuführende Wärmestrom ist in Tabelle 5-7 aufgelistet.

**Tabelle 5-7: Simulierte Betriebspunkte und der damit verbundene abzuführende Wärmestrom**

Betriebspunkt	BP 1	BP 2	BP 3	BP 4	BP 5
<b>Stromdichte / mA cm<sup>-2</sup></b>	100	200	300	400	500
<b>Abzuführender Wärmestrom pro Zelle / W</b>	11,4	25,6	41,4	58,5	77,8
<b>Abzuführender Wärmestrom gesamt / W</b>	114	256	414	588	778

Die Wärmeabfuhr erfolgt einzig über die extern strömende Wärmeträgerflüssigkeit. Alle Flächen zur Umgebung werden als adiabat angenommen. Der Wärmetransport und die Wärmabgabe an die Wärmeträgerflüssigkeit erfolgt über die in den drei Kühlzellen eingebetteten Heatpipes. Das mit Hilfe des CFD-Strömungslösers Fluent erstellte erste

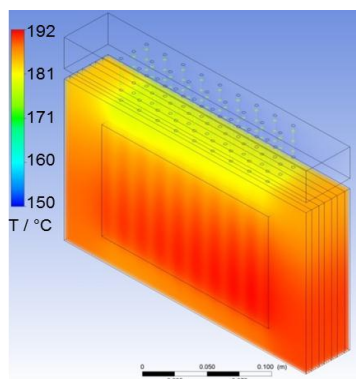
Modell, das diese Randbedingungen aufweist, ist in Abbildung 5-18 dargestellt. Jede der drei Kühlzellen beinhaltet neun Heatpipes mit einer Länge von jeweils 200 mm und einem Durchmesser von 3 mm.



**Abbildung 5-18: CFD-Modellansatz einer Heatpipe unterstützten externen Kühlung**

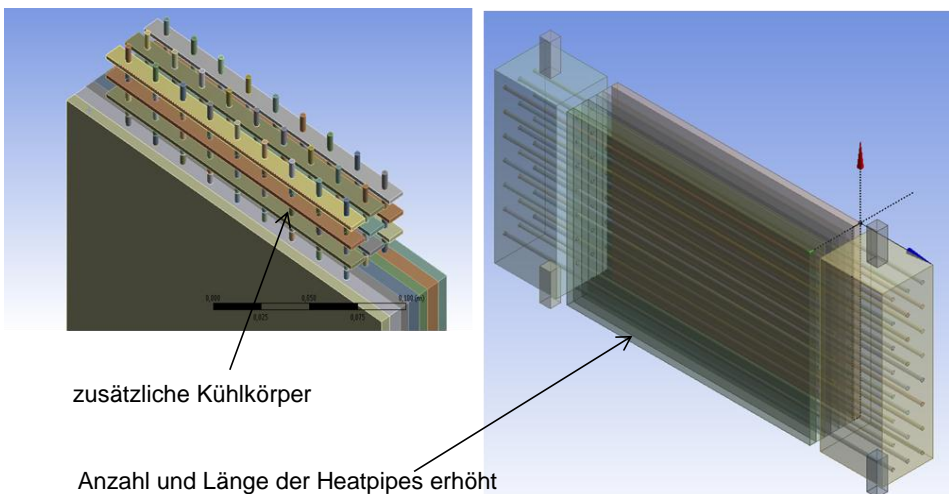
### 5.3.1.2 Ergebnisse der CFD-Simulationen

Das in Abbildung 5-18 dargestellte Modell wurde für einen Wärmestrom von 778 W bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  im Reformatbetrieb simuliert. Als Kühlmedium wird Wärmeträgerflüssigkeit bei einer Eintrittstemperatur von  $150^\circ\text{C}$  und einem Massenstrom von  $6 \text{ L min}^{-1}$  eingesetzt. Die simulierte Temperaturverteilung des HT-PEFC-Modells ist in Abbildung 5-19 dargestellt.



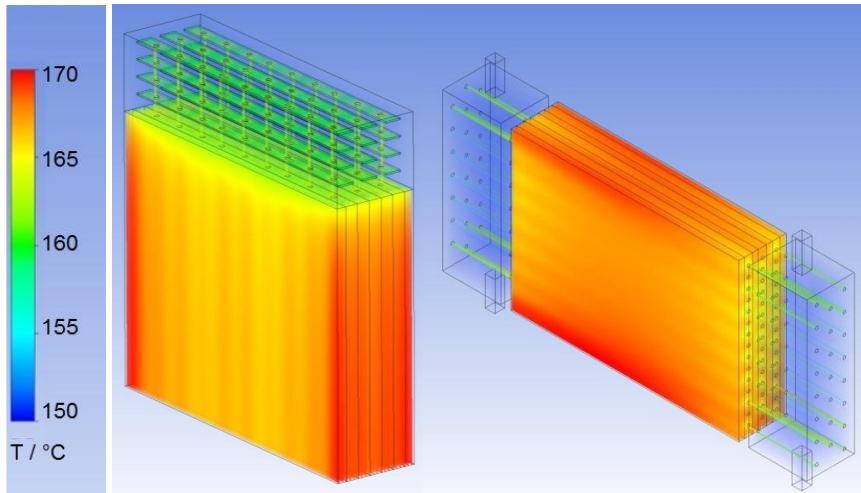
**Abbildung 5-19: Simulierte Temperaturverteilung des HT-PEFC-Modells**

Anhand der Abbildung 5-19 ist zu erkennen, dass bei diesen Randbedingungen eine ausreichende Wärmeabfuhr für den sicheren Betrieb einer HT-PEFC nicht gewährleistet ist. Die Temperaturen erreichen im Maximum 192 °C im Bereich der MEA und sind damit deutlich oberhalb der zulässigen Grenze von 180 °C. Bei genauerer Analyse stellt sich heraus, dass nicht die Wärmetransportkapazität der eingesetzten Heatpipes, sondern der Wärmeübergang von den Heatpipes an die Wärmeträgerflüssigkeit der limitierende Faktor ist. Mit den eingesetzten 27 Heatpipes, die auf einer Länge von 30 mm von Wärmeträgerflüssigkeit benetzt sind, lässt sich ein Wärmestrom von etwa 544 W übertragen. Eine detaillierte Rechnung dazu ist im Anhang zu finden. Aus diesem Grund ist es erforderlich, die Randbedingungen zu ändern. Dabei gibt es prinzipiell zwei Vorgehensweisen: Zum einen kann die Oberfläche der Heatpipes vergrößert werden, zum anderen kann die Temperaturdifferenz zwischen der Heatpipeoberfläche und der Wärmeträgerflüssigkeit vergrößert werden. Eine Oberflächenvergrößerung und damit auch eine verbesserte Wärmeübertragung kann entweder durch eine höhere Anzahl an Heatpipes, längere Heatpipes oder Anbauteile (Kühlkörper) erfolgen. Der Durchmesser der Heatpipes soll weiterhin konstant bleiben und drei Millimeter betragen, um die Breite der Kühlzellen nicht zu vergrößern. Die Ansätze zur Oberflächenvergrößerung sind in Abbildung 5-20 dargestellt.



**Abbildung 5-20: Möglichkeiten zur Oberflächenvergrößerung der Heatpipes**

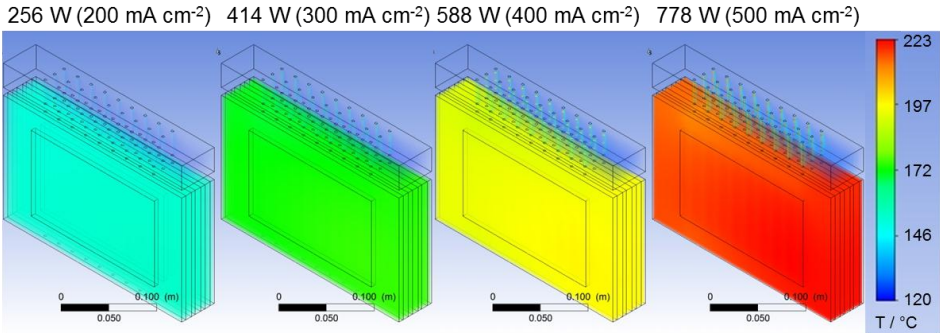
Die in Abbildung 5-20 gezeigten Modelle wurden bei gleichen Randbedingungen wie bei dem Modell aus Abbildung 5-19 simuliert. Die Temperaturverteilung bei einer simulierten Wärmeleistung von 778 W (bei  $500 \text{ mA cm}^{-2}$ ) beider Modelle ist in Abbildung 5-21 gezeigt.



**Abbildung 5-21: Temperaturverteilung bei einer simulierten Wärmeleistung von 778 W (bei  $500 \text{ mA cm}^{-2}$ ) und  $T_{WT,ein}=150 \text{ °C}$ ; links: zusätzliche Kühlkörper, rechts: Anzahl und Länge der Heatpipes erhöht**

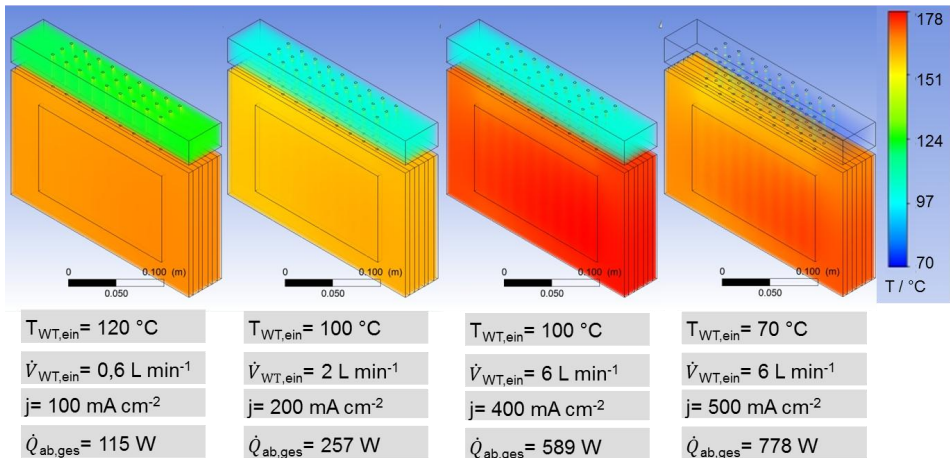
Gut zu erkennen ist, dass eine ausreichende Kühlung bei beiden Modellen erfolgt. Die Temperaturen liegen unterhalb der  $180 \text{ °C}$ -Betriebstemperaturgrenze. Eine Kühlung im Reformatbetrieb über den gesamten Betriebsbereich bis zu einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  ist mit beiden Modellen daher möglich. Nachteilig ist jedoch bei der Variante mit den Kühlkörpern, dass es fertigungsbedingt schwierig ist, solch einen Kühlkörper in einem geschlossenen Wärmeträgerflüssigkeitskreislauf einzubauen. Die Variante mit der längeren und größeren Anzahl Heatpipes wird im Vergleich zu der nicht funktionierenden Variante teurer, schwerer und voluminöser.

Aus diesen Gründen soll das ursprünglich gewählte Modell verwendet werden. Um dennoch einen sicheren Betrieb bis zu einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  zu gewährleisten, muss die Eintrittstemperatur verringert werden. Dazu wurden weitere Simulationen (Abbildung 5-22) durchgeführt, bei denen die Eintrittstemperatur auf  $120 \text{ °C}$  abgesenkt wurde. Der Massenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit beträgt  $0,03 \text{ kg s}^{-1}$  ( $\approx 2 \text{ L min}^{-1}$ ).



**Abbildung 5-22: Simulierte Temperaturverteilung  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$**

In Abbildung 5-22 ist zu erkennen, dass bei Stromdichten über 300 mA cm<sup>-2</sup> die Temperaturen im Stack die Betriebstemperaturgrenze von 180 °C überschreiten. Bei einer konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur von 120 °C und einem Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom von 2 L min<sup>-1</sup> ist eine ausreichende Kühlung nur für einen kleinen Stromdichtebereich zwischen 200 und 300 mA cm<sup>-2</sup> möglich. Bei hohen Stromdichten über 300 mA cm<sup>-2</sup> muss entweder die Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit verringert oder der Volumenstrom erhöht werden. Die damit simulierten Temperaturverteilungen sind in Abbildung 5-23 gezeigt.

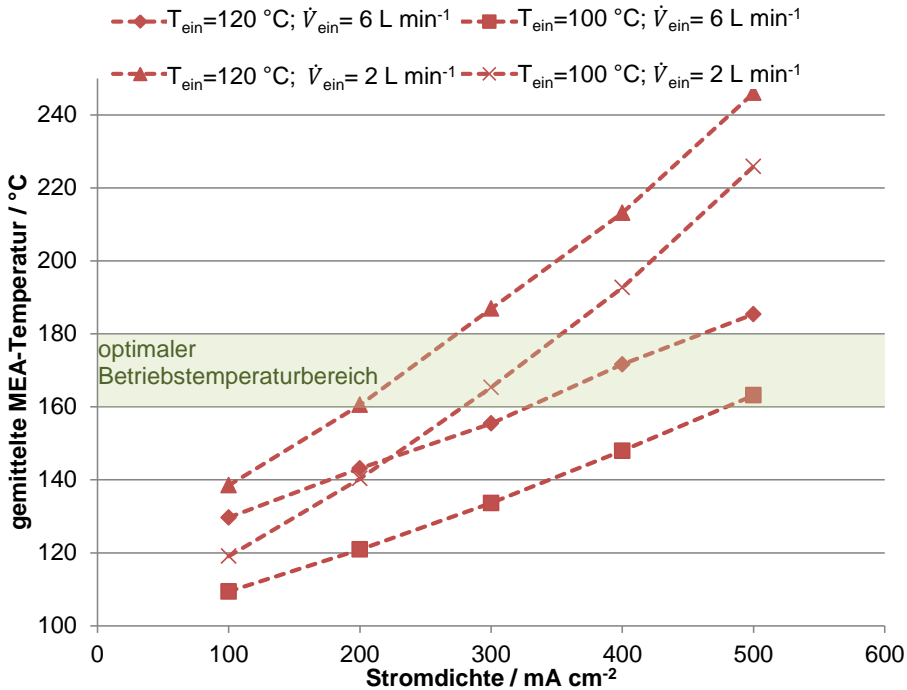


**Abbildung 5-23: Simulierte Temperaturverteilungen in den Betriebspunkten 1,2,4,5 bei angepasster  $T_{WT,ein}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}$**

Es konnte gezeigt werden, dass durch ein Absenken der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur und einer Erhöhung des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms eine ausreichende Kühlung auch in den Betriebspunkten bei 400 und 500 mA cm<sup>-2</sup> möglich ist. Im gesamten simulierten Betriebsbereich liegen die Stacktemperaturen im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen 160 °C und 180 °C. Um eine Aussage über die sich



im gesamten simulierten Betriebsbereich einstellenden Temperaturen treffen zu können, wurden für verschiedene konstante Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen die Temperaturen der 10 MEAs flächengemittelt und in Abbildung 5-24 dargestellt.



**Abbildung 5-24: Flächengemittelte MEA-Temperaturen für verschiedene konstante Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen**

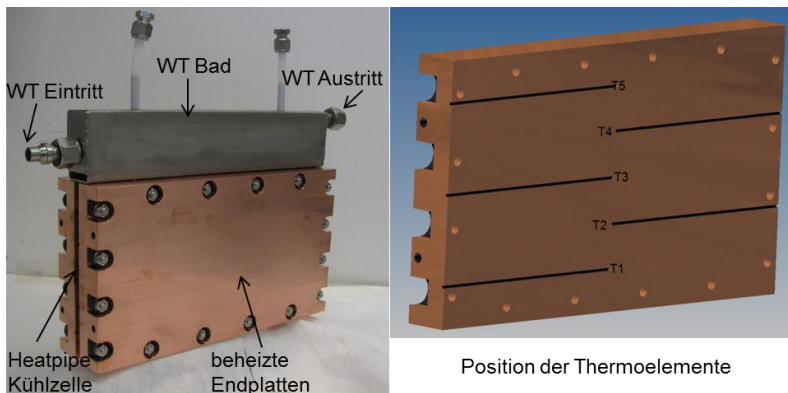
Insgesamt ist zu erkennen, dass mit steigender abzuführender Wärmeleistung die gemittelte MEA-Temperatur steigt. Sowohl eine Verringerung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur als auch eine Erhöhung des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms führen zu einer Verringerung der Stacktemperatur. Ein Absenken der Eintrittstemperatur von 120 auf 100 °C reduziert die mittlere Stacktemperatur um etwa 20 K. Durch das Erhöhen des Volumenstroms kann insbesondere im hohen Stromdichtebereich ( $> 300\text{ mA cm}^{-2}$ ) eine deutliche Verringerung der mittleren Stacktemperatur um mehr als 20 K erreicht werden. Mit konstanten Eintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$  ist ein sicherer Stackbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $270\text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Bei höheren Stromdichten überschreitet die mittlere Stacktemperatur die Betriebstemperaturgrenze von 180 °C. Für konstante Eintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=100\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$  liegt die mittlere Stacktemperatur im gesamten simulierten Stromdichtebereich unterhalb der Betriebstemperaturgrenze. Allerdings zeigt sich, dass die Stacktemperaturen bei Stromdichten unterhalb von  $500\text{ mA cm}^{-2}$  außerhalb des optimalen Betriebstemperaturbereichs liegen. Falls ein Stackbetrieb mit geregelten Eintrittsbedingungen vorgesehen ist,

kann ein Stackbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich von 160 bis 180 °C in einem breiten Stromdichtebereich von 200 bis etwas über 500 mA cm<sup>-2</sup> gewährleistet werden. Dies deckt den üblichen Betriebsbereich eines reformatbetriebenen HT-PEFC-Stacks.

Insgesamt zeigen die CFD-Simulationen, dass ein 10-zelliger HT-PEFC-Stack mit 200 cm<sup>2</sup> aktiver MEA-Fläche im Reformatbetrieb mit Hilfe von 3 Heatpipe-Kühlzellen mit insgesamt 27 Heatpipes ausreichend extern temperiert werden kann.

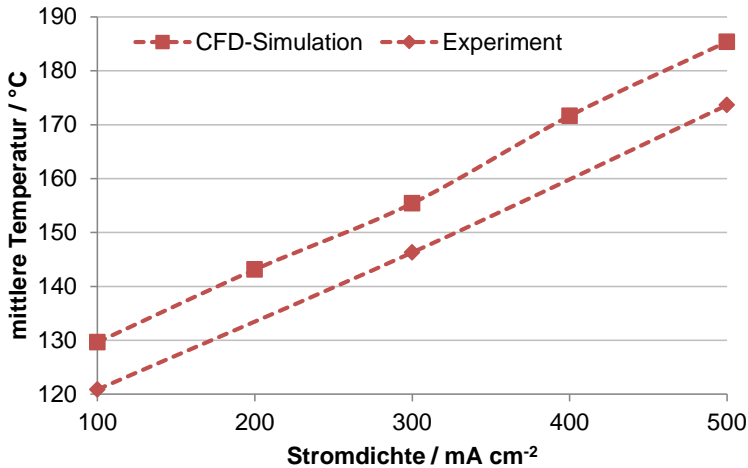
#### 5.3.1.3 Vorversuche anhand einer Heatpipe-Kühlzelle

Zur Validierung der CFD-Simulationen wurde ein Vorversuch durchgeführt. Dazu wurde eine Heatpipe-Kühlzelle mit angeschlossenem externen Wärmeträgerflüssigkeitsbad zwischen zwei elektrisch beheizte Kupferendplatten verspannt. Mit Hilfe der regelbaren in die Endplatten integrierten Heizpatronen konnte der in den Betriebspunkten 1, 3 und 5 (vgl. Tabelle 5-7) pro Kühlzelle abzuführende Wärmestrom erzeugt werden. Dieser Wärmestrom wurde durch die in der Kühlzelle integrierten 9 Heatpipes an die extern strömende Wärmeträgerflüssigkeit abgeführt. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 5-25 dargestellt.



**Abbildung 5-25: Versuchsaufbau zur Verifizierung der CFD-Simulationen**

Zur Überprüfung der Temperaturverteilung wurden 10 Thermoelemente (Typ K) an den in Abbildung 5-25 gezeigten Stellen integriert. Zusätzlich wurden die Ein- und Austrittstemperaturen des Wärmeträgerflüssigkeitsbades gemessen. Eine thermische Isolation aus Silikonschaum soll möglichst adiabate Randbedingungen schaffen. Bei den Messungen zeigte sich, dass die Temperaturdifferenzen zwischen den 10 Thermoelementen mit maximal 2 K sehr gering sind. Abbildung 5-26 zeigt daher die mittlere Temperatur aller 10 Thermoelemente in den Betriebspunkten 1 bis 3 im Vergleich zu den gemittelten Temperaturen der CFD-Simulation.



**Abbildung 5-26: Vergleich der Simulation mit dem Vorversuch bei Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von  $T_{WT, \text{ein}}=100\text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT, \text{ein}}=6\text{ L min}^{-1}$**

Im Vergleich zeigt sich, dass die Verläufe der Temperaturen über die Stromdichte nahezu identisch verlaufen. Fertigungstechnisch bedingt werden die Heatpipes etwa 1 cm tiefer in das Wärmeträgerflüssigkeitsbad eingetaucht. Somit kann mehr Wärme übertragen werden. Aufgrund dessen liegen die Temperaturen des Vorversuches im Mittel 10 K unter denen der CFD-Simulation. Insgesamt zeigt sich, dass das CFD-Modell geeignet ist, um eine reale Heatpipe-unterstützte externe Stackkühlung zu simulieren.

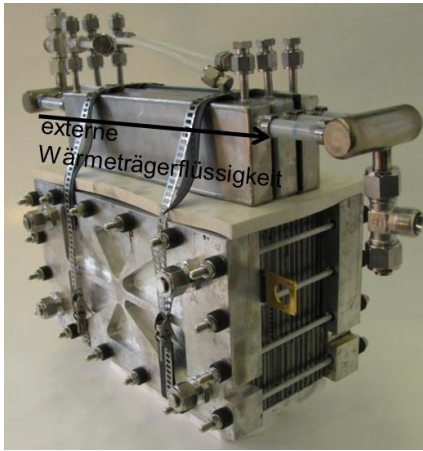
### 5.3.2 Experimentelle Untersuchung einer Heatpipe-unterstützten Kühlung

In Kapitel 5.3.1 wurde gezeigt, dass es möglich ist, einen HT-PEFC-Stack mit 10 Zellen und einer aktiven Fläche von  $200\text{ cm}^2$  mit Hilfe von 3 Heatpipe-Kühlzellen, die jeweils 9 Heatpipes enthalten, nur extern zu temperieren. Im nächsten Schritt soll das reale Betriebsverhalten eines solchen Stacks experimentell untersucht werden.

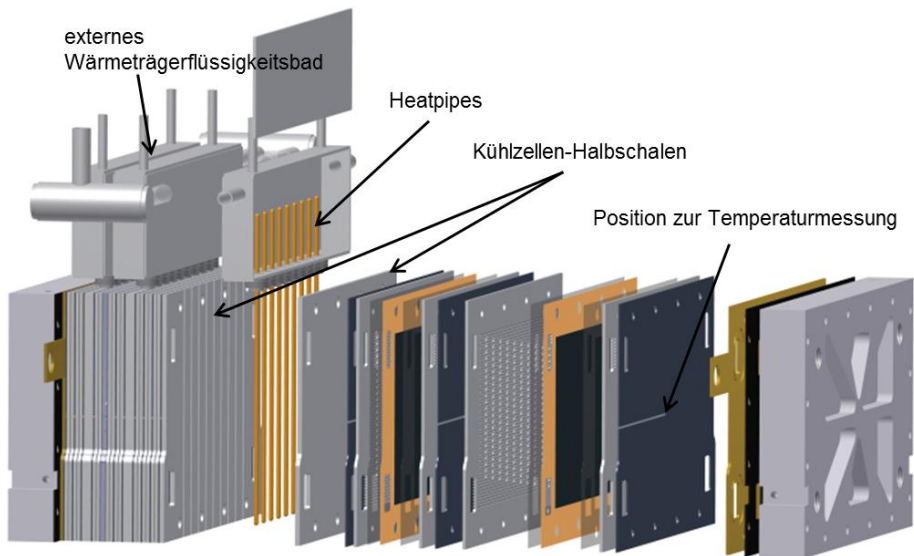
#### 5.3.2.1 Versuchsaufbau

Das grundlegende Stackkonzept orientiert sich an dem in Tabelle 3-1 vorgestellten Stackkonzept. Abweichend davon wurden jedoch keine Kathodenplatten mit integriertem Kühlflowfield sondern 3 graphitische Heatpipe-Kühlzellen integriert. Die Randbedingungen der experimentellen Untersuchungen sind in Tabelle 5-8 dargestellt. Eine detaillierte CAD-Aufbauzeichnung ist in Abbildung 5-27 zu finden.

**Tabelle 5-8: Stackkomponenten und Betriebsbedingungen für die experimentellen Untersuchungen**

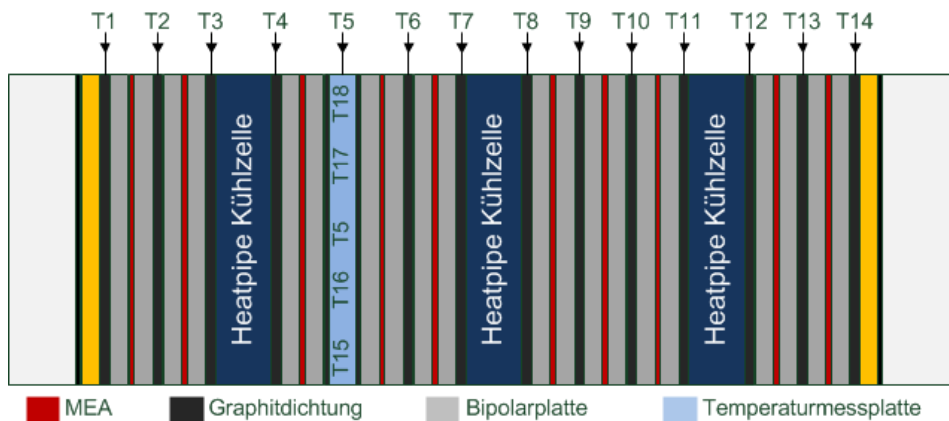


Zellen	10
Aktive MEA-Fläche	200 cm <sup>2</sup>
MEA	BASF Celtec® P1000
Bipolarplatten	Graphit/Phenolharz Komposit, Eisenhuth BBP4
Heatpipes	27 Stück [122] Material: Kupfer/Wasser; L=200 mm, d <sub>a</sub> = 3 mm
Kathodengas	Luft
Anodengas	Reformat (42 vol.% H <sub>2</sub> , 57 vol.% N <sub>2</sub> , 1 vol.% CO)
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{Ref/Luft}} = 2/2$
Gas-Eintrittstemp.	160 °C
Wärmeträgerflüssigkeit	Fragoltherm S-15-A
Therm. Isolation	20-30 mm Silikonschaum
Teststand	Hydrogenics
Thermoelemente	20 (Typ K)
Datenlogger	KEITHLEY 2701



**Abbildung 5-27: CAD-Aufbauzeichnung des Heatpipe-unterstützten extern gekühlten HT-PEFC-Stacks**

Wie in Abbildung 5-27 zu erkennen, findet der Wärmetransport an das Wärmeträgerflüssigkeitsbad mit Hilfe der 27 Heatpipes statt. Die Heatpipes sind 30 mm tief in die externen Wärmeträgerflüssigkeitsbäder eingetaucht. Dies entspricht der CFD-gestützten Auslegung. Zwischen den Bipolarplatten wurden zur Temperaturmessung 14 Thermoelemente vom Typ K auf Höhe des geometrischen Zentrums der MEA platziert (T1-T14). Zusätzliche 4 Thermoelemente wurden zur Messung der Temperaturverteilung in vertikaler Richtung in der in Abbildung 5-2 dargestellten Temperaturmessplatte integriert. 2 Thermoelemente messen die Ein- und Austrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit. Die Anordnung der horizontal integrierten Thermoelemente zur Bestimmung der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle ist in Abbildung 5-28 gezeigt.



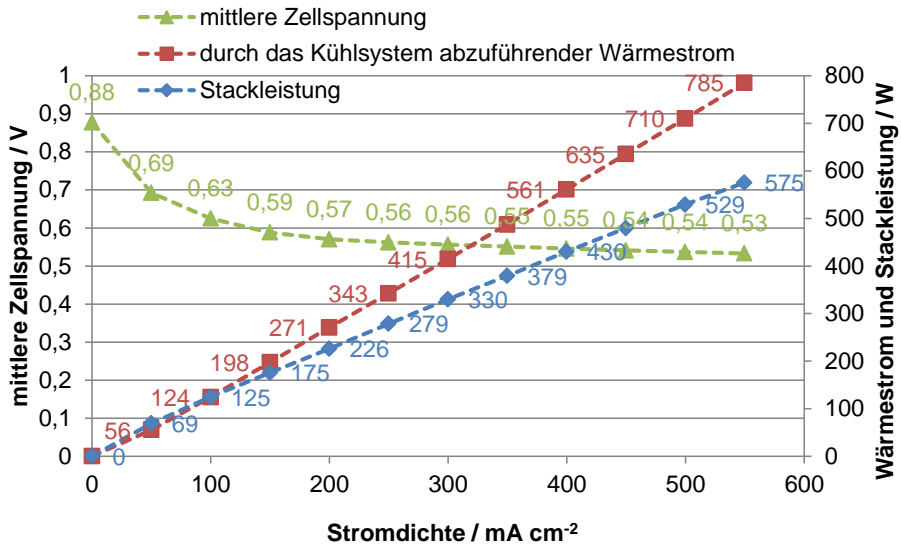
**Abbildung 5-28: Anordnung der horizontal integrierten Thermoelemente zur Bestimmung der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle**

Der Heatpipe-unterstützte extern gekühlte HT-PEFC-Stack wurde in dem in Kapitel 4.1 beschriebenen Teststand eingebaut und vermessen.

### 5.3.2.2 Ergebnisse und Diskussion

Um die Stackleistung und mögliche Einflüsse der externen Heatpipe-unterstützten Kühlung beurteilen zu können, wurden Strom/Spannungs-Kennlinien nach dem in Kapitel 5.1.2 beschriebenen Prinzip aufgenommen und die Temperaturen im stationären Zustand vermessen.

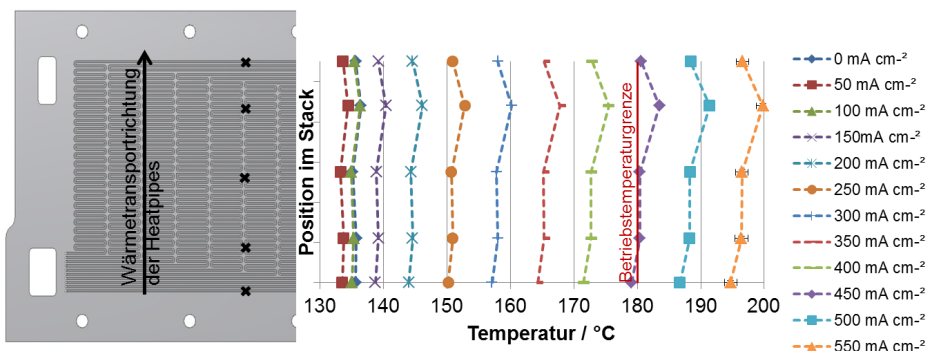
In einem ersten Versuch wurde ein Stackbetrieb mit konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$  untersucht. Die bei diesen Betriebsbedingungen (vgl. Tabelle 5-8) aufgenommene Strom/Spannungskennlinie ist in Abbildung 5-29 gezeigt.



**Abbildung 5-29:** U-j-Kennlinie sowie Stackleistung und abzuführender Wärmestrom für einen Stackbetrieb mit konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$

Es wird deutlich, dass bei einem Stackbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $550\text{ mA cm}^{-2}$  kein negativer Einfluss des Kühlsystems auf die Leistungserzeugung zu erkennen ist. Die mittlere Zellspannung beträgt  $0,53\text{ V}$  bei einer Stromdichte von  $550\text{ mA cm}^{-2}$  und ist damit vergleichsweise hoch für einen Stack im Reformbetrieb. Bei diesen Betriebsbedingungen kann eine maximale Leistung von  $575\text{ W}_{el}$  erzeugt werden.

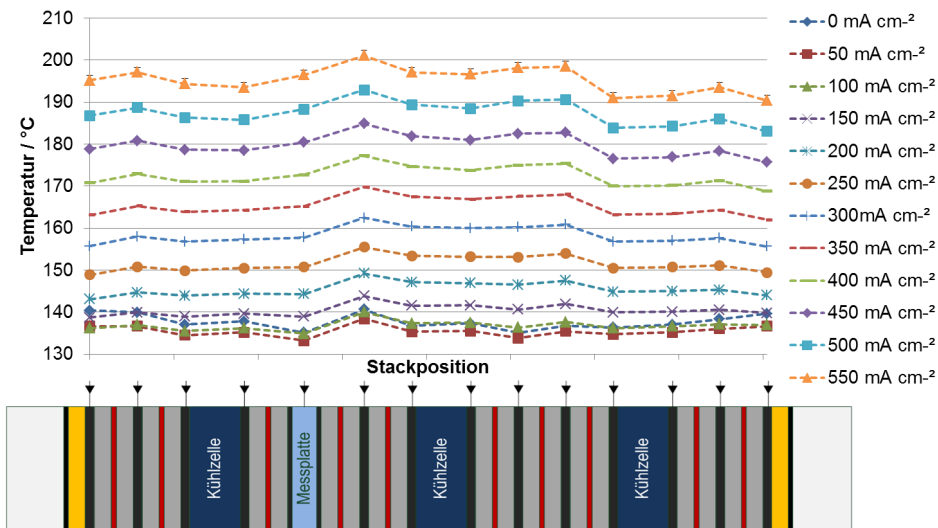
Die bei diesen Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen in der Temperaturmessplatte gemessene vertikale Temperaturverteilung ist in Abbildung 5-30 dargestellt.



**Abbildung 5-30:** Vertikale Temperaturverteilung für einen Stackbetrieb mit konstanten Eintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$

Die Abbildung 5-30 zeigt, dass durch den Einsatz der Heatpipes und der damit verbundenen hohen axialen Wärmeleitfähigkeit eine homogene Temperaturverteilung über die gesamte Höhe der aktiven MEA-Fläche erreicht wird. Die maximale Temperaturdifferenz von 5,6 K wurde bei einer Stromdichte von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  bestimmt. Problematisch ist, dass ab einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  die Betriebstemperaturgrenze von  $180^\circ\text{C}$  überschritten wird. Der Stackbetrieb ist folglich auf Stromdichten unter  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  limitiert. Dies wurde auch in der CFD-gestützten Auslegung vorhergesagt (vgl. Abbildung 5-24). Bei Stromdichten unterhalb von  $350 \text{ mA cm}^{-2}$  liegen die Temperaturen mit unter  $160^\circ\text{C}$  außerhalb des optimalen Betriebstemperaturbereichs von  $160$  bis  $180^\circ\text{C}$ . Stromdichten unterhalb  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  führen sogar zu Betriebstemperaturen zwischen  $130$  und  $140^\circ\text{C}$ . Dies hat besonders im dauerhaften stationären Reformatbetrieb negative Auswirkungen, da der Zellwirkungsgrad aufgrund der geringeren  $\text{CO}$ -Toleranz niedrig ist.

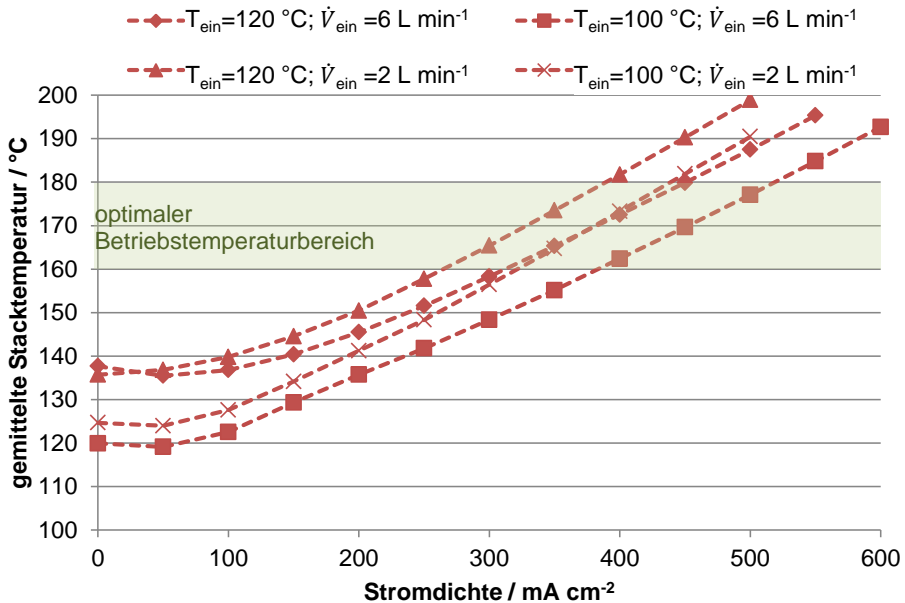
Neben der vertikalen Temperaturverteilung muss insbesondere die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle betrachtet werden, da insgesamt nur drei Heatpipekühlzellen in den 10-zelligen Stack integriert wurden. Die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle ist für die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120^\circ\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$  in Abbildung 5-31 dargestellt.



**Abbildung 5-31: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle für die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von  $T_{WT,ein}=120^\circ\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$**

Ebenso wie bei der Messreihe zur Ermittlung der vertikalen Temperaturverteilung steigt das Temperaturniveau mit steigender Stromdichte an. Die Betriebstemperaturgrenze wird ab einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  überschritten. Anhand Abbildung 5-31 ist zu sehen, dass die Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle maximal  $10,7 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt.

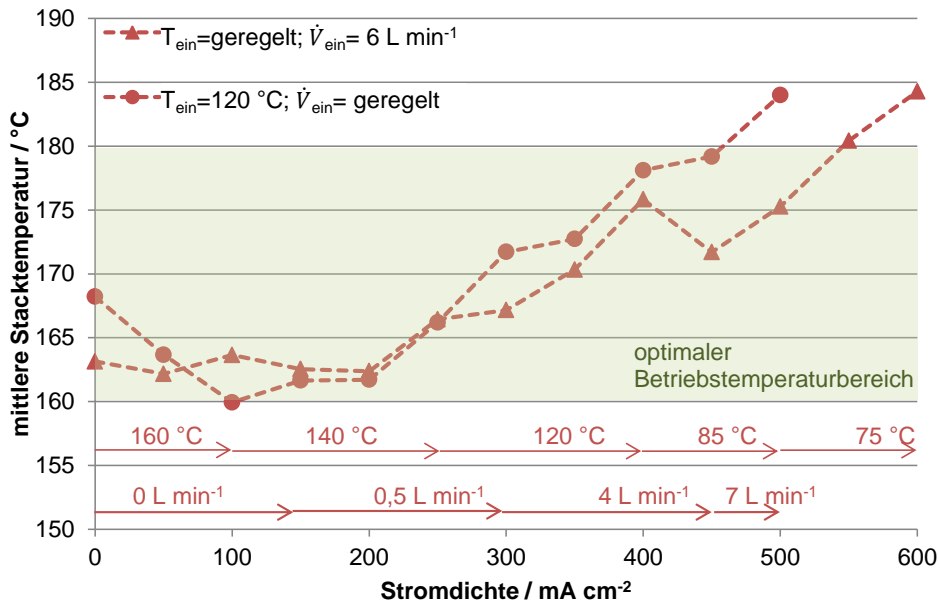
Um einen Betrieb bei Stromdichten von mehr als  $400 \text{ mA cm}^{-2}$  zu ermöglichen, werden die in Kapitel 5.3.1.2 empfohlenen niedrigeren Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperaturen untersucht. Zum Vergleich der variierten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen wurden die Temperaturen der 14 horizontal angeordneten Thermoelemente gemittelt (vgl. Abbildung 5-28; T1-T14). Die Ergebnisse sind in Abbildung 5-32 dargestellt.



**Abbildung 5-32: Gemittelte Stacktemperaturen (T1-T14) bei konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen**

Die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen beeinflussen die Stacktemperaturen wie in der CFD-Simulation vorausgesagt (vgl. Abbildung 5-24). Eine Absenkung der Eintrittstemperatur von  $120$  auf  $100^\circ\text{C}$  bei konstantem Volumenstrom verringert die mittlere Stacktemperatur um etwa  $10 \text{ K}$ . Derselbe Effekt tritt bei einer Erhöhung des Volumenstroms von  $2$  auf  $6 \text{ L min}^{-1}$  auf. Bei den Eintrittsbedingungen  $T_{WT,\text{ein}}=100^\circ\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT,\text{ein}}=6 \text{ L min}^{-1}$  beträgt die maximal Stromdichte  $520 \text{ mA cm}^{-2}$ . Hier kann der Stack unterhalb der Betriebstemperaturgrenze betrieben werden. Für die Eintrittsbedingungen  $T_{WT,\text{ein}}=120^\circ\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT,\text{ein}}=2 \text{ L min}^{-1}$  sinkt die maximale Stromdichte auf knapp unter  $400 \text{ mA cm}^{-2}$ . Im für den Reformatbetrieb optimalen Temperaturbereich (grün markiert) beträgt die minimale Stromdichte  $270 \text{ mA cm}^{-2}$ , die mit Eintrittsbedingungen  $T_{WT,\text{ein}}=120^\circ\text{C}$  und  $\dot{V}_{WT,\text{ein}}=2 \text{ L min}^{-1}$  erreicht wird. Das bedeutet, dass mit konstanten Eintrittsbedingungen ein Stackbetrieb im Temperaturbereich zwischen  $160$  und  $180^\circ\text{C}$  nur in einem Stromdichtebereich von etwa  $130 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich ist. Um diesen Betriebsbereich zu erweitern, besteht die Möglichkeit, die Eintrittsbedingungen zu regeln, wie in Abbildung 5-33 gezeigt wird.

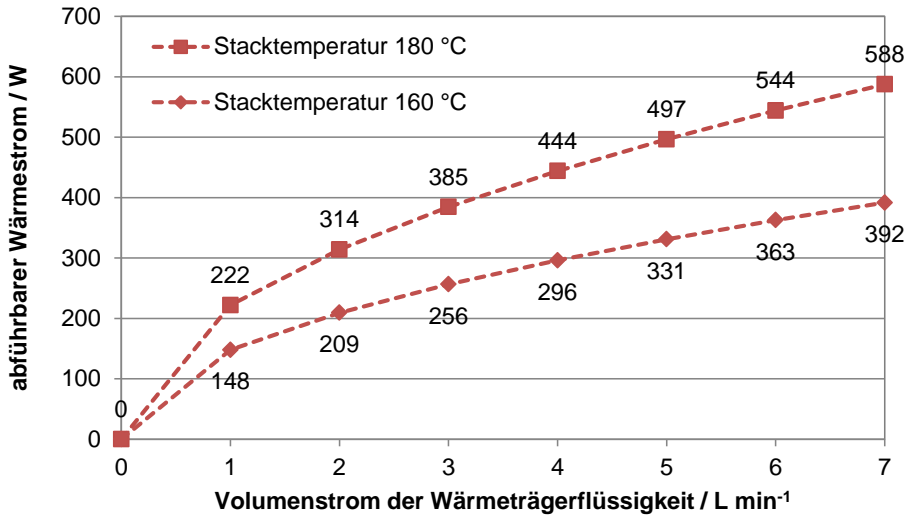




**Abbildung 5-33: Gemittelte Stacktemperaturen (T1-T14) bei geregelten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen**

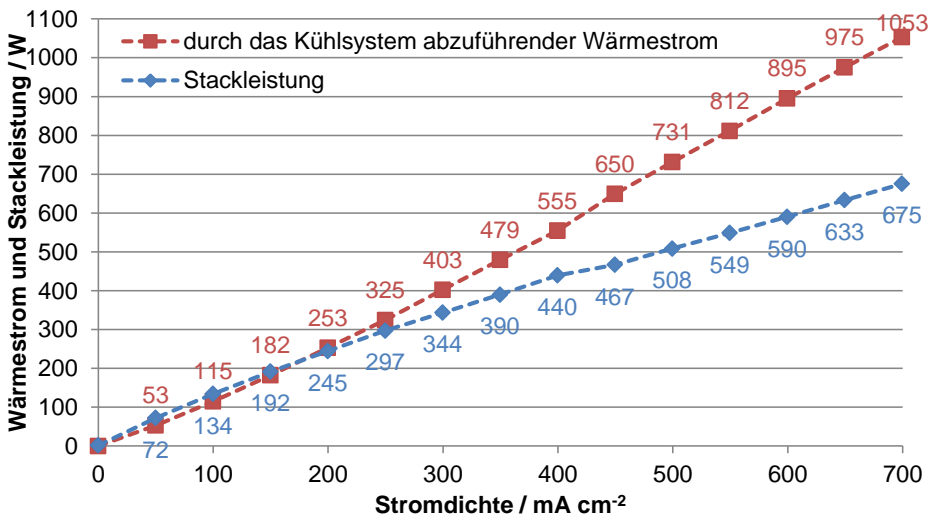
Aufgrund der geregelten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen wird der Stromdichtebereich, bei dem die mittleren Stacktemperaturen im optimalen Betriebstemperaturbereich liegen, im Vergleich zu den ungeregelten Eintrittsbedingungen deutlich erweitert. Sowohl durch eine Regelung des Volumenstroms als auch der Eintrittstemperatur erweitert sich der betreibbare Stromdichtebereich von 130 mA cm<sup>-2</sup> auf 450 mA cm<sup>-2</sup> bzw. 550 mA cm<sup>-2</sup>. Selbst ein Betrieb bei höheren Stromdichten wäre bei tieferen Eintrittstemperaturen möglich, da sich aufgrund der höheren Temperaturdifferenz der Wärmeträgerflüssigkeit gegenüber der Heatpipeoberfläche die maximale Wärmeabfuhr weiter steigern ließe. Ein Test war mit dem hier eingesetzten Teststand jedoch nicht möglich.

Mit Hilfe einer rechnerischen Abschätzung kann gezeigt werden, dass eine Regelung der Eintrittstemperatur vorteilhaft gegenüber der Regelung des Volumenstroms ist. Entscheidend ist, dass der Wärmeübergang von den Heatpipes auf die Wärmeträgerflüssigkeit der limitierende Faktor ist. Aufgrund der nur sehr geringen Wärmeübertragungsfläche ( $A_{\text{gesamt}} = 0,0076 \text{ m}^2$ ) der Heatpipes im Wärmeträgerflüssigkeitsbad (vgl. Kapitel 5.3.1) ist dies bei diesem Kühlkonzept der Fall. Für die in Abbildung 5-33 gezeigte Regelung des Volumenstroms ist in Abbildung 5-34 der berechnete maximal abführbare Wärmestrom dargestellt. Details der Berechnung sind im Anhang zu finden.



**Abbildung 5-34: Berechneter abführbarer Wärmestrom in Abhängigkeit vom Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit für  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$**

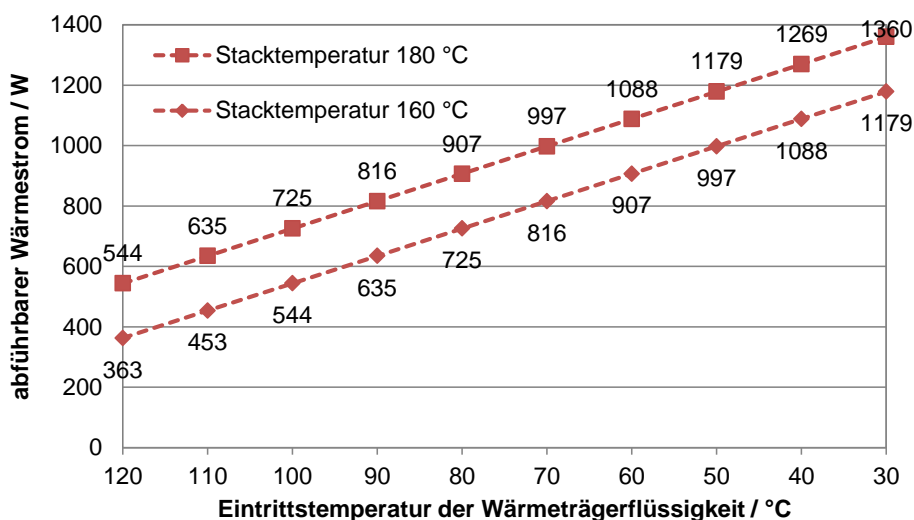
Anhand Abbildung 5-34 wird deutlich, dass mit steigendem Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit der abzuführende Wärmestrom steigt. Allerdings nimmt die Steigung mit steigendem Volumenstrom ab und wird bei noch höheren Volumenströmen durch den Wärmeübergang begrenzt. Bei einem Volumenstrom von  $7\text{ L min}^{-1}$  beträgt der maximal abzuführende Wärmestrom  $392\text{ W}$  wenn die Stacktemperatur  $160\text{ °C}$  und  $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$  beträgt. Wie in Abbildung 5-35 dargestellt, müssen aber  $1053\text{ W}$  abgeführt werden, wenn der Stack bei einer Stromdichte von  $700\text{ mA cm}^{-2}$  betrieben werden soll.



**Abbildung 5-35: Abzuführender Wärmestrom und el. Stackleistung**

Wird der Stack bei  $j=700 \text{ mA cm}^{-2}$  betrieben, steigt folglich die Stacktemperatur an, da nicht ausreichend Wärme abgeführt wird. Dies hat zur Folge, dass die Temperaturdifferenz zwischen Heatpipeoberfläche und Wärmeträgerflüssigkeit größer wird und somit wiederum mehr Wärme abgeführt werden kann. Wie in Abbildung 5-34 zu erkennen kann bei einer Stacktemperatur von  $180^\circ\text{C}$  und einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  ein Wärmestrom von  $588 \text{ W}$  abgeführt werden. Allerdings ist dies immer noch nicht ausreichend. Die Berechnungen zeigen, dass eine ausreichende Wärmeabfuhr bei einer Stromdichte von  $400 \text{ mA cm}^{-2}$  gewährleistet ist. Dies korrespondiert sehr gut mit den experimentell bestimmten Werten, die einen Betrieb bei Stacktemperaturen von  $180^\circ\text{C}$  und einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  bei einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  zeigen (vgl. Abbildung 5-33). Die geringfügig höhere Stromdichte ist auf eine zusätzliche Wärmeabfuhr über die nicht ideal thermisch isolierte Stackoberfläche zurückzuführen.

Der Einfluss der Regelung der Eintrittstemperatur kann ebenfalls über die Wärmeübertragung von den Heatpipes auf die Wärmeträgerflüssigkeit berechnet werden. Außerdem kann somit die Stacktemperatur bei Eintrittstemperaturen von unter  $75^\circ\text{C}$  abgeschätzt werden, die aufgrund der Teststandslimitierung nicht gemessen werden konnten. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5-36 dargestellt.



**Abbildung 5-36: Berechneter abführbarer Wärmestrom in Abhängigkeit von der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit für  $\dot{V}_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$**

In Abbildung 5-36 ist zu sehen, dass mit sinkender Eintrittstemperatur der abführbare Wärmestrom aufgrund der größer werdenden Temperaturdifferenz zwischen Heatpipeoberfläche und Wärmeträgerflüssigkeit zunimmt. Damit die Betriebstemperatur im Stack  $180^\circ\text{C}$  nicht überschreitet, ist für den maximal abzuführenden Wärmestrom von  $1053 \text{ W}$  bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  eine Eintrittstemperatur von  $60^\circ\text{C}$  notwendig. Der Stackbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich von  $160$  bis  $180^\circ\text{C}$  kann also durch die Regelung der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit sichergestellt werden.

Insgesamt ist aufgrund der rechnerisch gezeigten Limitierung bei der Regelung des Volumenstroms eine Regelung der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit notwendig.

#### 5.3.3 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Die in diesem Kapitel untersuchte externe aktive Kühlung mit Heatpipeunterstützung eignet sich sehr gut um HT-PEFC-Stacks mit großer aktiver MEA-Fläche ( $200 \text{ cm}^2$ ) im Reformatbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  zu temperieren. Eine Regelung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur abhängig von der erzeugten Wärme ist jedoch notwendig. Die gemessene Temperaturdifferenz über die aktive MEA-Fläche von  $5,6 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  ist im Vergleich zu den experimentellen Untersuchungen von Scholta et al. [31] um  $10 \text{ K}$  geringer, obwohl die dort untersuchte externe Kühlung (ohne Heatpipes) an einem Stack mit nur einer halb so großen aktiven MEA-Fläche durchgeführt wurde. Zurückzuführen ist dies hauptsächlich auf die hier verwendeten Heatpipes.

Ein Aufheizen des Stacks auf Betriebstemperatur ( $> 120 \text{ °C}$ ) ist mit diesem Kühlkonzept ebenfalls möglich, da die Wärmetransportrichtung der Heatpipe umkehrbar ist. Die Wärmetransportkapazität der Heatpipe beim Aufheizen ist jedoch aufgrund des Flüssigkeitstransports gegen die Schwerkraft geringer als bei der Kühlung. Ein weiterer Vorteil der externen Kühlung ist die Verlagerung des Dichtungsproblems (vgl. Kapitel 5.1.4) in nicht-kritische Bereiche außerhalb des Stacks. Des Weiteren ist eine effektivere Wärmeabfuhr möglich, da aufgrund der möglichen höheren Temperaturdifferenz zwischen Stackbetriebstemperatur und Wärmeträgerflüssigkeitstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstrom geringer sein kann als bei einer vergleichbaren internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung. Bei entsprechender Auslegung kann auch Wasser als Wärmeträgermedium eingesetzt werden.

Insgesamt zeigte sich, dass der Wärmeübergang von den Heatpipes an das Wärmeträgermedium der limitierende Faktor ist. Durch den Einsatz längerer Heatpipes oder mehr Kühlzellen ließen sich auch Stacks der kW-Klasse in hohen Stromdichtebereichen ausreichend temperieren. Alternativ bietet sich eine weitere Absenkung der Wärmeträgereintrittstemperatur an.

Aufgrund des Einsatzes der Heatpipes ist auch die Kühlung von großen aktiven Flächen ( $>200 \text{ cm}^2$ ) möglich und birgt damit das Potential Stacks der kW-Klasse im Reformatbetrieb zu temperieren.



## 6 Luftkühlung

In diesem Kapitel wird eine Stackkühlung mit dem Kühlmedium Luft betrachtet. Die Luft soll nach Möglichkeit Umgebungsbedingungen aufweisen. Prinzipiell gibt es zwei Möglichkeiten den Stack intern mit Luft zu kühlen. Zum einen kann der Kathodenluftstrom erhöht werden zum anderen besteht die Möglichkeit der Kühlung in separaten Kühlstrukturen. Beide Möglichkeiten sollen in diesem Kapitel auf die Eignung hinsichtlich der Kühlung von HT-PEFC-Stacks der kW-Klasse untersucht werden. Eine weitere Möglichkeit ist die passive externe Kühlung. Dabei ist zu beachten, dass der Stack in seiner designierten Anwendung von Umgebungsluft umgeben ist.

### 6.1 Externe passive Kühlung mit freier Konvektion und Strahlung

Bei einer externen Wärmeabfuhr über die Oberfläche des Stacks an die Umgebung handelt es sich um eine rein passive Kühlung. Ein Aufheizen des Stacks ist nicht ohne einen zusätzlichen aktiven Energieeintrag möglich. In diesem Kapitel soll die Möglichkeit einer passiven Kühlung analytisch betrachtet werden. Dazu wird ein Stackkonzept untersucht, welches angelehnt das in Tabelle 3-1 vorgestellte Konzept ist. Um den Einfluss von Geometrievariationen auf den abgegebenen Wärmestrom bei unterschiedlichen Betriebspunkten aufzuzeigen, wurde ein vereinfachtes Stackmodell aufgebaut, bei dem verschiedene Parameter variiert werden können. Die gerechneten Variationen sind in Tabelle 6-1 aufgelistet.

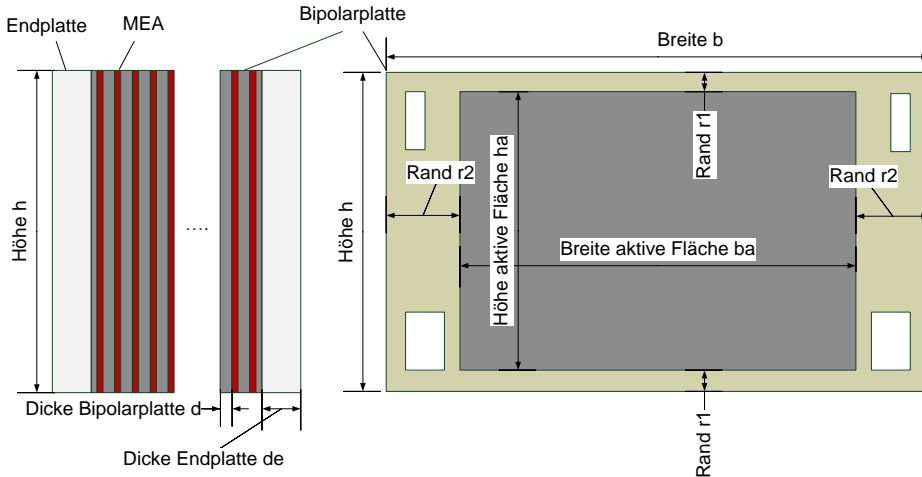
**Tabelle 6-1: Variationen der Einflussparameter für das HT-PEFC Modell**

Einflussparameter	Variationen des Modells				
	0	1	2	$\infty$	
Dicke der Isolierung / cm					
Zellenzahl	5	10	20	50	100
Größe der aktiven MEA-Fläche / cm <sup>2</sup>	200		350		500
Seitenverhältnis der aktiven MEA-Fläche ( $h_a / b_a$ )	55 / 91		1 / 1		1 / 8

Mit diesem Stackmodell wurde die Energiebilanzgleichung aus Kapitel 3.3.2 (vgl. Gleichung (3-47)) gelöst und berechnet, wie viel Wärme durch freie Konvektion und Strahlung über die Oberflächen abgeführt werden kann. Eine Berechnung der Temperaturverteilung im Inneren des Brennstoffzellenstacks ist mit diesem Modellansatz nicht möglich. Zur Ermittlung der Temperaturverteilung wurde im Anschluss eine CFD-Simulation anhand einer ausgewählten Geometrie durchgeführt (vgl. Kapitel 6.1.3). Damit lassen sich die orts aufgelösten Temperaturen im Stackmodell, die sich durch eine rein passive Kühlung ergeben würden, bestimmen.

### 6.1.1 Modellbildung und Geometrievariationen

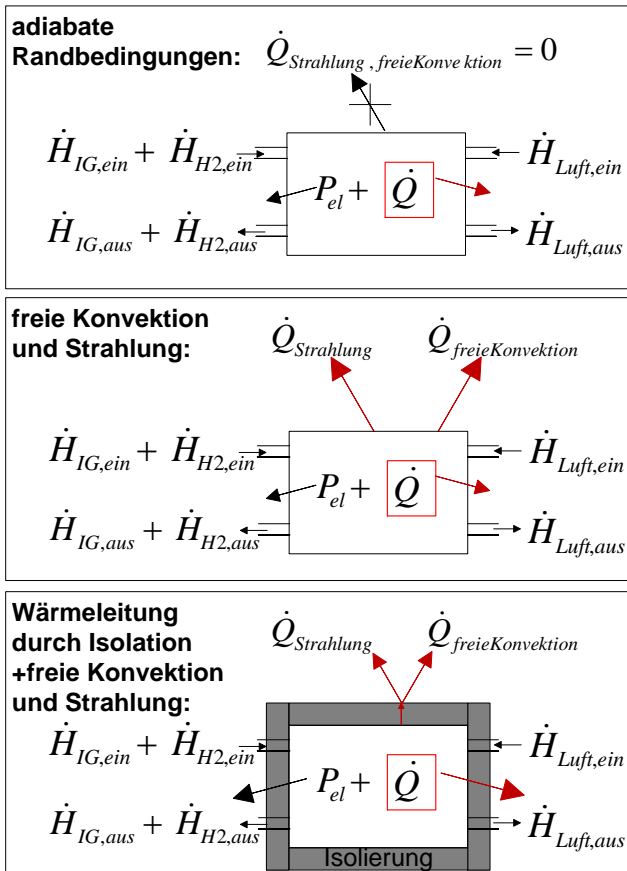
Ausgehend vom HT-PEFC-Stack mit 200 cm<sup>2</sup> aktiver Fläche wird für die Energiebilanz ein vereinfachtes Stackmodell mit einer variablen Geometrie entwickelt. In Abbildung 6-1 sind die Variationsmöglichkeiten der Geometrieparameter zu erkennen.



**Abbildung 6-1: Variationsmöglichkeiten der Geometrieparameter**

Der Rand um die aktive MEA-Fläche begrenzt die minimale Breite und Höhe des Modells auf einen realen Wert, auch wenn die aktive Fläche infinitesimal dünn oder schmal wird. Dieser Rand entspricht bei einem realen Stack dem benötigten Platz für die Dichtung und die Manifolds. Um ein realistisches Modell zu erhalten, sind die Endplatten 30 mm dick und bestehen aus massivem Aluminium. Da für diese Geometrievariation keine aktive Kühlung Berücksichtigung findet, ist die Dicke der Bipolarplatten auf 3 mm festgelegt. Das bedeutet, dass pro Zelle im Stack der Stack 3 mm dicker wird. Die Vergrößerung der Dicke durch die MEAs ( $< 0,7$  mm) wird nicht berücksichtigt. Weitere feste Größen des Modells sind die Materialeigenschaften von Aluminium (Endplatten) und Graphit (Bipolarplatten). Bei den Betriebsparametern wird nur der Betrieb mit synthetischem Reformat berücksichtigt. Die Berechnung des abzuführenden Wärmestroms basiert auf der in Abbildung 3-2 gezeigten Strom/Spannungs-Kennlinie. Einen möglichen Einfluss des untersuchten Kühlsystems auf die Kennlinie und damit auf die abzuführende Wärme kann nicht berücksichtigt werden. Das bedeutet, dass auch bei Änderungen des Flächenverhältnisses der aktiven MEA-Fläche (bei gleichbleibender absoluten Größe der aktiven MEA-Fläche) der abzuführende Wärmestrom gleich bleibt. Berücksichtigung findet nur eine Variation der absoluten Größe der aktiven MEA-Fläche, wobei der abzuführende Wärmestrom mit der Flächenvariation skaliert wird. Die Eintritts- und Austrittstemperatur der Reaktandengase (160 bzw. 170 °C), die Stackoberflächentemperatur (165 °C) sowie die Umgebungstemperatur (25 °C) werden als konstant angenommen. Die Temperatur im Inneren und die Temperaturverteilung sind nicht Gegenstand dieser Modelluntersuchung.

Als Variationsmöglichkeiten bleiben die aktive Fläche, das Seitenverhältnis der aktiven Fläche und die Zellenzahl. Betrachtet werden alle Variationsmöglichkeiten über einen Betriebsbereich von 0 bis 500 mA cm<sup>-2</sup>. Der Standardvergleichsfall ist ein Stack mit möglichst ähnlichen Parametern wie sie auch zur Ermittlung der Leistungsdaten verwendet wurden. Dies sind eine aktive Fläche von 200 cm<sup>2</sup> bei einem Seitenverhältnis von 11 cm zu 18,2 cm und einer Zellenzahl von 5 sowie adiabaten Randbedingungen. Als weitere Variationsmöglichkeit für den Stackbetrieb wurden drei Modellvariationen bezüglich der Wärmeabfuhr über die Oberfläche gewählt. Dies sind ein Stack mit adiabaten Randbedingungen, ein Stack ohne und ein Stack mit einer thermischen Isolierung. Die drei Varianten sind in Abbildung 6-2 dargestellt.



**Abbildung 6-2: Modellvariationen bezüglich der Wärmeabfuhr**

Angenommen wird ein stationärer Betrieb mit synthetischem Reformat (42 Vol.% H<sub>2</sub>, 57 Vol.% N<sub>2</sub> und 1 Vol.% CO). Als Isolierung wurde ein Silikonschaum gewählt ( $\lambda=0,07 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) [113]. Die weitere Wärmeabfuhr nach dem Wärmedurchgang durch die Isolationsschicht erfolgt über freie Konvektion und Strahlung. Ziel der Berechnungen ist, den Betrag des Wärmestroms (vgl. Abbildung 6-2:  $\dot{Q}$  roter Kasten) zu ermitteln. Wenn



dieser gleich null ist, ist ein stationärer Betrieb bei einer Stacktemperatur von 165 °C sichergestellt. Hierbei wird schon deutlich, dass es in diesem Modellansatz nur einen Betriebspunkt geben kann, bei dem eine externe passive Kühlung funktioniert. Dies ist der Fall, wenn die erzeugte Wärme und elektrische Leistung gleich dem abgeführten Wärmestrom durch die freie Konvektion und Strahlung sowie dem über die Reaktandengase abgeführten Wärmestrom ist. Ist das Ergebnis der Berechnungen ein positiver Wert für den Wärmestrom muss zusätzlich aktiv Wärme abgeführt werden oder der Stack heizt sich auf höhere Temperaturen auf. Bei einem negativen Ergebnis muss dem Stack aktiv Wärme zugeführt werden, um die festgelegte Betriebstemperatur zu erreichen. Im realen Stackbetrieb gibt es jedoch nicht nur einen Betriebspunkt, sondern einen Betriebsbereich bei dem der Stack betrieben werden kann, da der Stack nicht nur bei einer konstanten Stacktemperatur betrieben wird, sondern in einem Temperaturbereich von 160 bis 180 °C (im Reformatbetrieb).

## 6.1.2 Einfluss von Geometrievvariationen auf die Energiebilanz

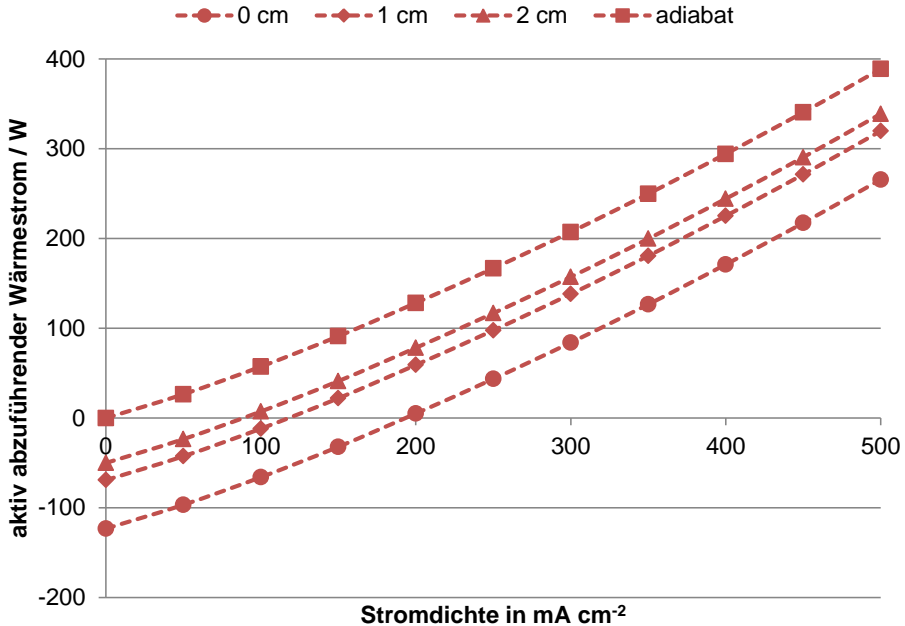
### 6.1.2.1 Einfluss von verschiedenen Isolationsdicken

Als erstes soll der Einfluss von verschiedenen thermischen Isolationsdicken auf die Energiebilanz berechnet werden. Die Randbedingungen sind in Tabelle 6-2 aufgeführt.

**Tabelle 6-2: Randbedingungen bei Variation der Isolationsdicke**

<b>Einflussparameter:</b>	<b>Isolierung</b>	<b>Zellenzahl</b>	<b>MEA-Fläche</b>	<b>Seitenverhältnis</b>
<b>Werte:</b>	<b>Variation</b>	5	200 cm <sup>2</sup>	55 / 91

Das konstante Seitenverhältnis von 55 / 91 der aktiven Fläche von 200 cm<sup>2</sup> führt zu einer Höhe von 11 cm und einer Breite von 18,2 cm. Ziel ist es, das Stackmodell hinsichtlich der Plausibilität zu beurteilen und einen Vergleich mit Erfahrungswerten aus dem Laborbetrieb zu bekommen. Ein direkter Vergleich mit experimentell ermittelten Ergebnissen ist nicht möglich, da bisher keine Stacks mit einer reinen passiven Kühlung untersucht wurden. Die Ergebnisse der Lösung der Energiebilanzgleichung sind in Abbildung 6-3 dargestellt.



**Abbildung 6-3: Einfluss von verschiedenen thermischen Isolationsdicken auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom eines Stacks mit 5 Zellen und einer aktiven MEA-Fläche von  $11 \times 18,2 \text{ cm}^2$**

Anhand der Abbildung 6-3 ist ein plausibles Modellverhalten zu erkennen. Mit zunehmender Isolationsdicke steigt der zusätzlich (aktiv) abzuführende Wärmestrom. Im Bereich geringer Stromdichten wird mehr Wärme abgeführt als im Stack erzeugt wird. Die aktive Kühlung müsste also faktisch dem Stack Wärme zuführen. Dies stimmt auch mit Erfahrungen aus dem Laborbetrieb überein, bei der ein nicht isolierter 5-zelliger Stack bis zu einer Stromdichte von etwa  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  beheizt werden muss, um eine Betriebstemperatur von  $160^\circ\text{C}$  zu gewährleisten. Im Betriebspunkt bei  $0 \text{ mA cm}^{-2}$  ist die meiste Wärme zuzuführen. Dies liegt daran, dass in dem Modell eine konstante Oberflächentemperatur von  $165^\circ\text{C}$  vorgegeben wurde. Im Vergleich zu dem nicht isolierten Stack verschiebt sich der Bereich bis zu dem eine aktive Wärmezufuhr notwendig ist mit steigender Isolationsdicke zu niedrigeren Stromdichten. Durch eine Verdopplung der Isolationsschicht von 1 auf 2 cm wird der Stromdichtebereich bei dem zusätzlich eine Wärmezufuhr notwendig ist um  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  verringert. Des Weiteren ist aus den Berechnungen mit dem Stackmodell ohne Isolierung abzulesen, dass ein Betrieb ohne zusätzliche aktive Kühlung nur bei einer Stromdichte von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich ist. Dies entspricht einer erzeugten elektrischen Leistung von  $130 \text{ W}$ . Ziel ist es jedoch, eine mögliche Kühlung für Stacks im Leistungsbereich von mehr als  $1 \text{ kW}_{\text{el}}$  zu entwickeln. Aus diesem Grund muss der Einfluss der Zellenzahl auf die Energiebilanz betrachtet werden.

6.1.2.2 Einfluss der Zellenzahl

Zur Beurteilung des Einflusses der Zellenzahl auf die passive Wärmeabfuhr wird ein Stackmodell ohne thermische Isolation und mit einer aktiven Fläche von 200 cm<sup>2</sup> bei einem Seitenverhältnis von 55/91 untersucht. Die Randbedingungen sind Tabelle 6-3 zu entnehmen. Die Ergebnisse der Energiebilanzrechnung für eine Variation von 5 bis 100 Zellen ist in Abbildung 6-4 dargestellt.

Tabelle 6-3: Randbedingungen bei Variation der Zellenzahl

Einflussparameter:	Isolierung	Zellenzahl	MEA-Fläche	Seitenverhältnis
Werte:	0 cm	Variation	200 cm <sup>2</sup>	55 / 91

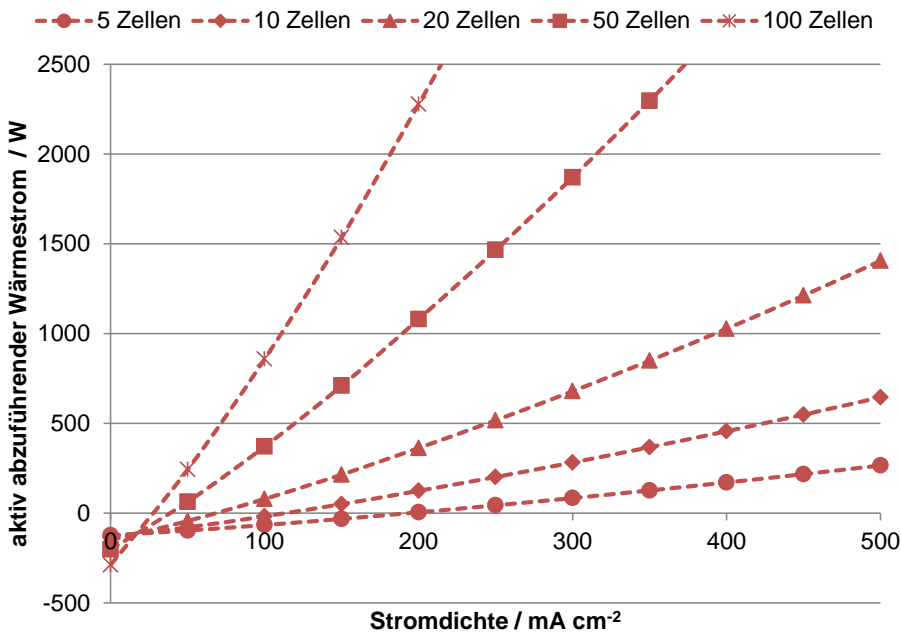


Abbildung 6-4: Einfluss der Zellenzahl auf den abzuführenden Wärmestrom eines thermisch nicht isolierten Stacks mit einer aktiven MEA-Fläche von 11 x 18,2 cm<sup>2</sup>

Abbildung 6-4 zeigt, dass mit steigender Zellenzahl der Einfluss der Oberflächenkühlung abnimmt. Die Stromdichte, bei der der zusätzlich aktiv abzuführende Wärmestrom gleich null ist, sinkt mit steigender Zellenzahl (Schnittpunkt mit der Ordinatenachse). Dies resultiert aus dem geringer werdenden Einfluss der Fläche der Endplatten und dem damit verbundenen geringeren Oberflächenverhältnis bei hohen Zellenzahlen, bei denen die volumetrische Leistungsdichte zunimmt. Aufgrund der zunehmenden Kurvensteigung, infolge der steigenden thermischen Leistung bei zunehmender Zellenzahl, resultieren aus kleinen Änderungen der Stromdichte hohe Wärmeüberschüsse, die durch eine aktive Kühlung abgeführt werden müssen. Der Stromdichtebereich bis zu dem Wärme aktiv

zugeführt werden muss sinkt von 200 auf 25 mA cm<sup>-2</sup>, bei zunehmender Zellenzahl von 5 auf 100. Dies bedeutet auch, dass eine rein passive Kühlung eines Stacks mit 100 Zellen nur bei einem Betriebspunkt von 25 mA cm<sup>-2</sup> möglich ist, wobei dann aber die erzeugte elektrische Leistung mit etwa 360 W ebenfalls sehr gering ist. Eine hohe Zellenzahl führt also zu einem sinkenden Einfluss der Kühlleistung über die Oberfläche.

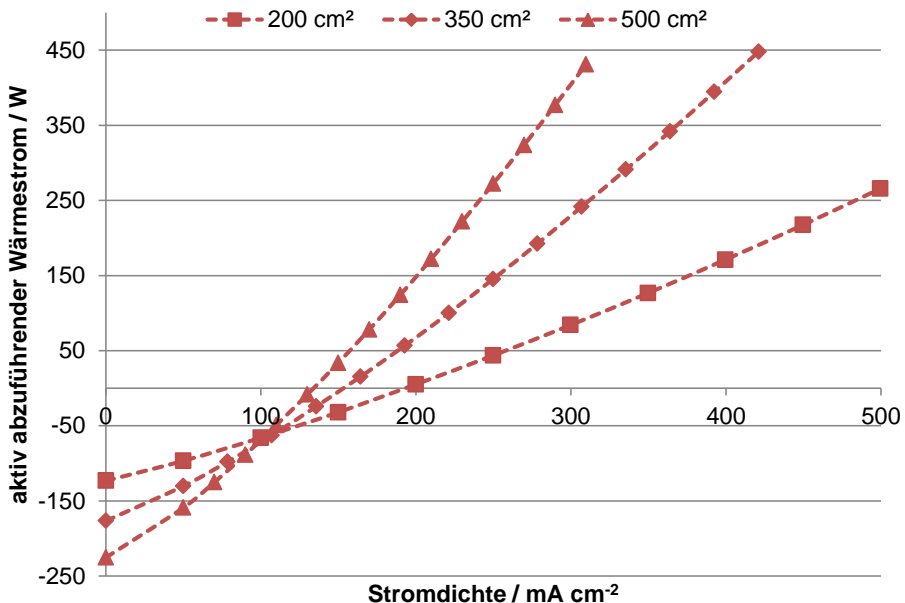
Ebenfalls ist hier die Auswirkung der als konstant angenommenen Oberflächentemperatur zu erkennen. Dadurch kommt es im Betriebspunkt 0 mA cm<sup>-2</sup> zu dem Effekt, dass die meiste Wärme bei hohen Zellenzahlen aufgrund der im Vergleich größeren Stackoberfläche abgeführt werden kann.

### 6.1.2.3 Einfluss der aktiven Fläche

Um mehr elektrische Leistung zu erzeugen, kann neben der Zellenzahl auch die aktive Zellfläche vergrößert werden. Exemplarisch wird deshalb im Folgenden ein Stackmodell mit 5 Zellen und drei verschiedenen Größen der aktiven Zellfläche untersucht. Tabelle 6-4 zeigt die festgelegten Randbedingungen. In Abbildung 6-5 sind die Auswirkungen der Flächenvariation auf den Wärmestrom dargestellt.

**Tabelle 6-4: Randbedingungen bei Variation der MEA-Fläche**

Einflussparameter:	Isolierung	Zellenzahl	MEA-Fläche	Seitenverhältnis
Werte:	0 cm	5	Variation	55 / 91



**Abbildung 6-5: Einfluss der aktiven MEA-Fläche auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom**

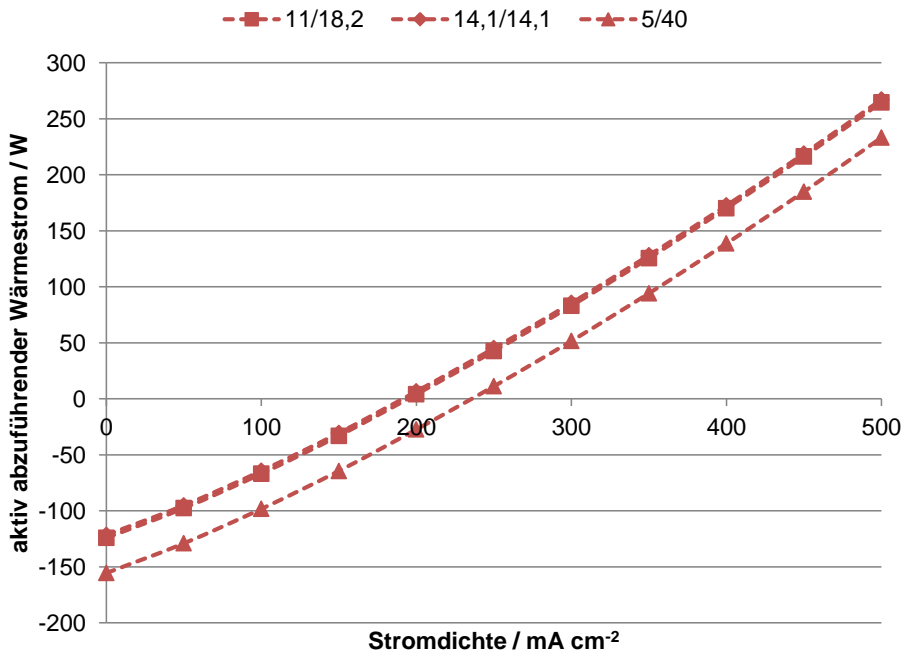
Eine Vergrößerung der aktiven Fläche bewirkt ebenfalls den in Abschnitt 6.1.2.2 beschriebenen verringerten Einfluss des Wärmeübergangs an der Oberfläche des Stacks. Aus diesem Grund verringert sich der Anteil des abgeführten Wärmestroms durch die passive Kühlung in der Energiebilanz. Um möglicherweise Stacks mit einer elektrischen Leistung von mehr als 1 kW zu kühlen, sollte das Verhältnis von Stackoberfläche zu Zellenzahl oder aktiver Fläche möglichst groß sein.

#### 6.1.2.4 Einfluss des Seitenverhältnisses

Wie die vorangegangenen Variationen gezeigt haben, ist mit dem bisher verwendeten Seitenverhältnis von 11/18,2 (vgl. Abbildung 6-1,  $h_a/b_a$ ) eine reine passive Kühlung nur bei geringen Stromdichten unter  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Der Einfluss der Variation dieses Seitenverhältnisses auf den zusätzlich aktiv abzuführenden Wärmestrom ist in Abbildung 6-6 gezeigt. Untersucht wird ein Stack mit 5 Zellen und einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  (vgl. Tabelle 6-5).

**Tabelle 6-5: Randbedingungen bei Variation des Seitenverhältnisses**

Einflussparameter:	Isolierung	Zellenzahl	MEA-Fläche	Seitenverhältnis
Werte:	0 cm	5	$200 \text{ cm}^2$	Variation

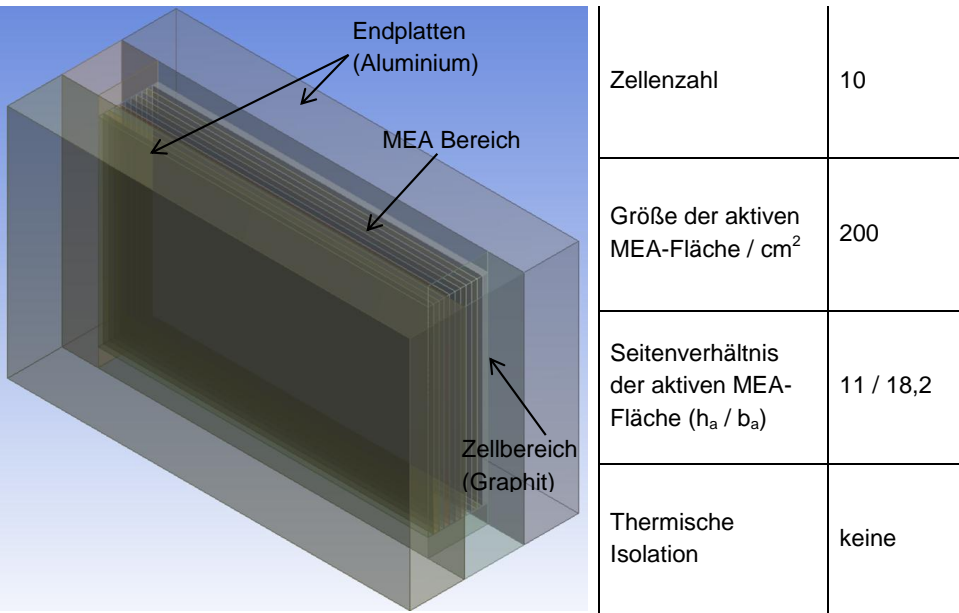


**Abbildung 6-6: Einfluss des Seitenverhältnisses auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom**

Die geringste Wärmeabfuhr über die Oberfläche wird bei einer quadratischen aktiven Fläche erreicht. Ein Unterschied zu dem bisher verwendeten Seitenverhältnis von 11/18,2 ist praktisch nicht zu erkennen. Erst bei einem Seitenverhältnis von 5/40 wird eine um 17 % größere Wärmeabfuhr an der Oberfläche erreicht. Dieses Seitenverhältnis führt jedoch schon zu einem sehr schmalen Stack und bei einer noch weiteren Erhöhung ist in der Praxis eine Gasgleichverteilung äußerst schwierig zu realisieren. Die Untersuchungen anhand von Stackmodellen mit mehr Zellen und Leistungen von etwa 1 kW<sub>el</sub> haben gezeigt, dass sich dort der Unterschied in der Wärmeabfuhr auf unter 2 % reduziert.

### 6.1.3 Bestimmung der orts aufgelösten Temperaturverteilung

Wie in Kapitel 6.1.1 deutlich wurde, kann mit Hilfe des auf der Energiebilanz basierenden Modells nur eine Aussage über den global abgeführten Wärmestrom getroffen werden. Aus den Variationen in Kapitel 6.1.2 konnte ein Betriebspunkt berechnet werden, in dem ein Betrieb ohne zusätzliche aktive Kühlung möglich ist. Es kann jedoch keine Aussage bezüglich der sich in diesem Betriebspunkt einstellenden lokalen Temperaturverteilung getroffen werden. Um diese zu quantifizieren, wurde eine 3D-CFD-Simulation (Ansys Fluent) für eine exemplarische Geometrie durchgeführt. Das CFD-Modell basiert auf dem in Kapitel 6.1.1 beschriebenen Stackmodell. Der durch die passive Kühlung abzuführende Wärmestrom wurde mit Hilfe der Energiebilanz berechnet und als homogene Wärmequelle im MEA-Bereich modelliert. Das CFD-Stackmodell ist in Abbildung 6-7 dargestellt.



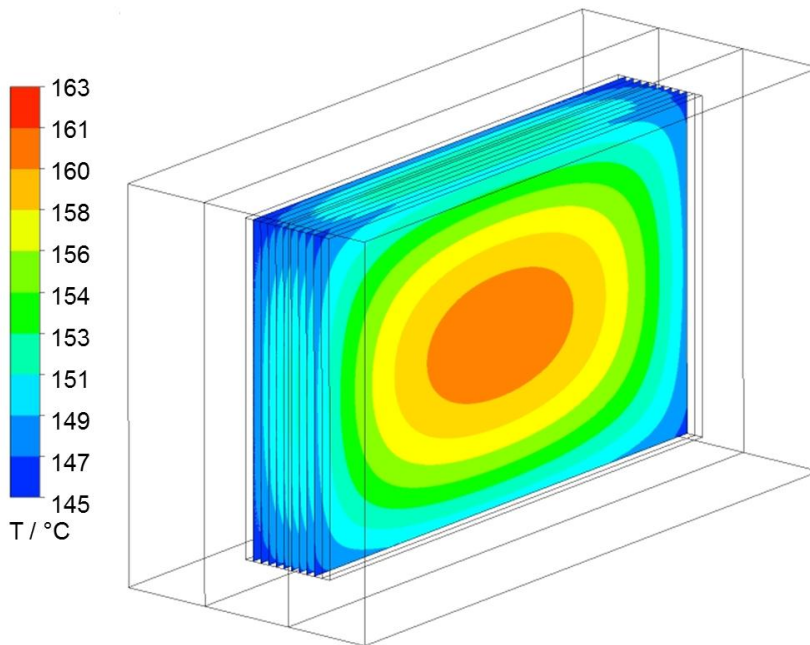
**Abbildung 6-7: CFD-Stackmodell zur Simulation der lokalen Temperaturverteilung bei einer rein passiven Kühlung über die Oberfläche**

Simuliert wurden 5 Betriebspunkte, die in Tabelle 6-6 aufgelistet sind.

**Tabelle 6-6: Simulierte Betriebspunkte des CFD-Modells**

Betriebspunkt	BP 1	BP 2	BP 3	BP 4	BP 5
Stromdichte / $\text{mA cm}^{-2}$	100	200	300	500	700
Erzeugte Wärmeleistung pro Zelle / W	11,4	25,6	41,4	77,8	118,6
Abzuführende Wärmestrom gesamt / W	114	256	414	778	1186

In Abbildung 6-8 ist die Temperaturverteilung auf den 10 MEAs des CFD-Modells für den Betriebspunkt 1 ( $100 \text{ mA cm}^{-2}$ ) dargestellt.

**Abbildung 6-8: Simulierte Temperaturverteilung auf den 10 MEAs des CFD-Modells für den Betriebspunkt 1 ( $100 \text{ mA cm}^{-2}$ )**

Hierbei wird deutlich, dass die Temperaturmaxima im geometrischen Zentrum der MEAs auftreten und die Temperaturen nach außen hin aufgrund der Wärmeabfuhr durch die freie Konvektion und Strahlung an der Oberfläche abnehmen. Insgesamt stellt sich ein Temperaturmaximum von  $160,2 \text{ °C}$  ein. Die maximale Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche beträgt  $16,3 \text{ K}$ . Wie auch mit dem Energiebilanzmodell aus Kapitel 6.1.2.2 vorhergesagt, ist für diesen 10-zelligen Stack ein Betrieb ohne zusätzliche Kühlung in diesem Betriebspunkt möglich. Die gemittelte Stacktemperatur (mittlere Temperatur der MEAs) beträgt für den Betriebspunkt 1  $155,3 \text{ °C}$ . Wird der Stack bei höheren Stromdichten betrieben, erhöht sich die mittlere Stacktemperatur. Ein Betrieb im zulässigen Betriebstemperaturbereich ist nur in einem kleinen Bereich um Betriebspunkt 1

( $100 \text{ mA cm}^{-2}$ ) möglich. Bei einer Stromdichte von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  (Betriebspunkt 2) beträgt die mittlere Stacktemperatur  $314 \text{ °C}$  und liegt damit deutlich über der maximal zulässigen Betriebstemperatur von  $180 \text{ °C}$ . Neben der mittleren Stacktemperatur steigt auch die Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche mit steigendem abzuführenden Wärmestrom. Wie die Simulationen zeigen beträgt im Betriebspunkt 2 ( $200 \text{ mA cm}^{-2}$ ) die maximale Temperaturdifferenz über der MEA-Fläche  $36,6 \text{ K}$ .

#### **6.1.4 Beurteilung des Kühlkonzeptes**

Insgesamt hat sich gezeigt, dass ein Stackbetrieb mit Hilfe der rein passiven Kühlung über Konvektion und Strahlung an der Oberfläche, wie er für Anwendungen als Bordstromerzeugung notwendig ist, nicht realisierbar ist. Ein Haupthindernis ist die zu geringe Wärmeabfuhr bei Stacks der Leistungsklasse von mehr als  $1 \text{ kW}_{\text{el}}$ , das sich auch nicht mit extremen Seitenverhältnissen ausreichend steigern lässt. Hinzu kommt, dass sich ein Betrieb bei unterschiedlichen Betriebspunkten nicht ohne Temperaturschwankungen im Stack ermöglichen lässt. Außerdem ist bei einem Kaltstart ein notwendiges Aufheizen nicht möglich. Ebenfalls kann die erzeugte Wärme nicht an anderer Stelle im System verwendet werden. Das hier untersuchte Kühlkonzept eignet sich also nicht, um alleinig einen HT-PEFC-Stack vollständig zu kühlen. Es kann jedoch in Kombination mit anderen Kühlmethoden zur Kühlung von Stacks beitragen.

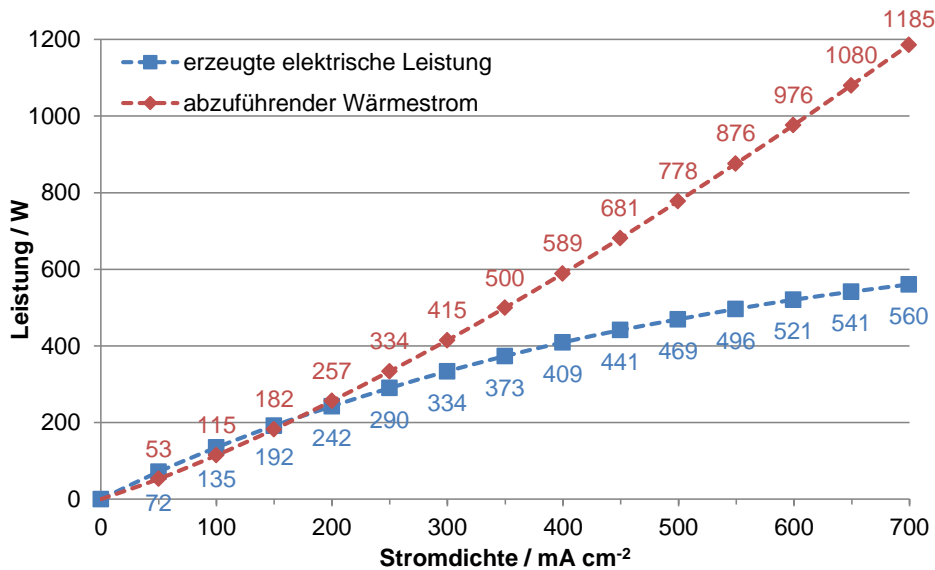
## **6.2 Interne Luftkühlung in separatem Kühlflowfield**

In Kapitel 2.2 wurde bereits die Möglichkeit einer Luftkühlung mittels eines separaten Kühlflowfields beschrieben. Dokumentierte, experimentelle Untersuchungen einer solchen Luftkühlung im Hinblick auf den Einsatz in Stacks der kW-Klasse gibt es im HT-PEFC-Bereich nicht. Aus diesem Grund soll in diesem Kapitel eine Luftkühlung für einen 10-zelligen HT-PEFC-Stack mit einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  ausgelegt und experimentell untersucht werden. Das Stackdesign entspricht dem in Kapitel 5.1.1.1 vorgestellten Aufbau. Die internen Kanalstrukturen für das Wärmeträgermedium werden auch hier verwendet. Das Kühlmedium Luft soll nach Möglichkeit nicht vorgewärmt werden und mit Umgebungstemperatur in den Stack einströmen. Zur Förderung der Kühlluft sollen Lüfter verwendet werden.

### **6.2.1 Auslegung eines luftgekühlten HT-PEFC-Stacks**

Der hier auszulegende 10-zellige HT-PEFC-Stack basiert auf dem bereits in Kapitel 5.1.1.1 vorgestellten Stack. Da keine Änderungen in den elektrochemisch aktiven Bereichen vorgenommen werden, konzentriert sich die Auslegung auf die zur Luftkühlung notwendigen Bereiche. Die erzeugte Wärme muss über die integrierten Kanalstrukturen an die Kühlluft abgegeben werden und wird damit aus dem Stack ausgetragen. Hierfür ist es notwendig, den abzuführenden Wärmestrom zu kennen. Dieser kann mit Hilfe der Energiebilanz berechnet werden (vgl. Kapitel 3.3.1). Die Ergebnisse für den hier untersuchten Stack sind in Abbildung 6-9 dargestellt.





**Abbildung 6-9: Abzuführender Wärmestrom für einen 10-zelligen, thermisch isolierten HT-PEFC-Stack im Reformatbetrieb**

Für die Auslegung muss der dafür notwendige Volumenstrom und der damit verbundene Druckverlust über die Kanäle berechnet werden. In Tabelle 6-7 sind die festgelegten Kühlparameter für den hier untersuchten Stack dargestellt.

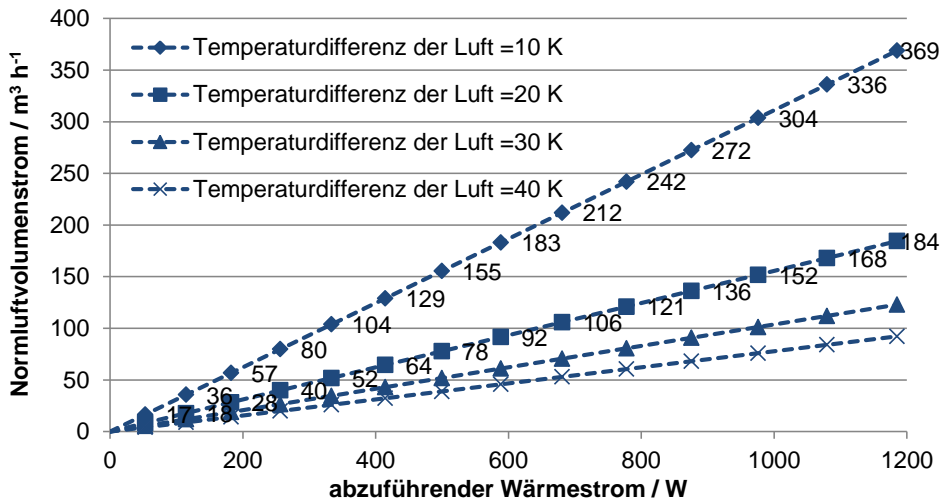
**Tabelle 6-7: Festgelegte Kühlparameter für den hier untersuchten Stack**



Kühlflowfield auf der Rückseite der Kathodenplatte

Zellenzahl im Stack	10
Kühlung	Luftkühlung jeder Zelle (in Kathodenplatte integriert)
Aktive MEA-Fläche	200 cm <sup>2</sup> (110 mm x 182 mm)
Kühlkanalgeometrie	45 gerade rechteckige Kanäle (1,5 mm x 2 mm) pro Kühlzelle
Länge der Kühlkanäle	159 mm (gesamt) 110 mm über MEA-Fläche
Wärmeträgermedium	Luft
Luft Eintrittstemperatur	Umgebungstemperatur

Um den benötigten Volumenstrom abzuschätzen, wurden Annahmen zu möglichen Temperaturdifferenzen zwischen ein- und austretender Luft getroffen. Daraufhin wurde mit Hilfe der Gleichung (3-20) der benötigte Luftvolumenstrom mit dem in Abbildung 6-9 bestimmten abzuführenden Wärmestrom berechnet. Dabei ist zu beachten, dass die Temperaturdifferenz nur angenommen wird und lediglich der Vorauslegung zur Lüfterauswahl dienen. Die sich real einstellenden Temperaturdifferenzen werden im Anschluss experimentell ermittelt. Die Ergebnisse der Abschätzung sind in Abbildung 6-10 dargestellt.



**Abbildung 6-10: Abgeschätzter benötigter Normluftvolumenstrom zur vollständigen Wärmeabfuhr**

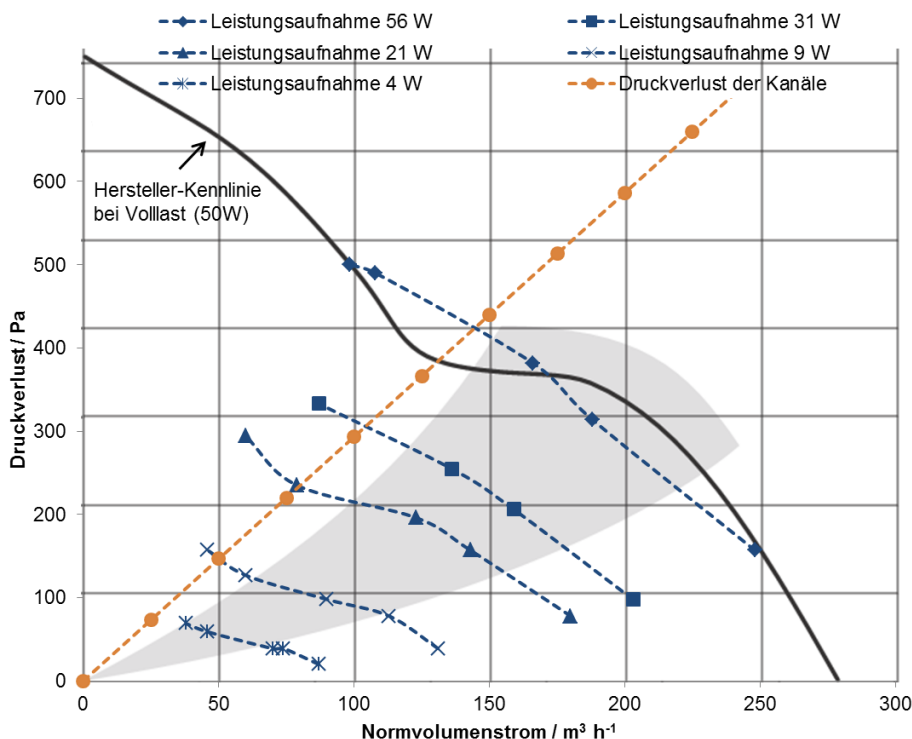
Anhand Abbildung 6-10 ist zu erkennen, dass bei steigendem abzuführenden Wärmestrom der benötigte Luftvolumenstrom steigt. Je höher die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretender Luft ist, desto geringer ist der benötigte Volumenstrom. Für die weitere Auslegung wird die Annahme einer sich einstellenden Temperaturdifferenz von 20 K verwendet. Bei dem Betrieb des Stacks wird folglich ein Lüfter mit einem maximal aufzubringenden Normvolumenstrom von  $184 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  benötigt.

Prinzipiell sind dafür verschiedene Lüfter oder Verdichter geeignet. Axiallüfter haben den Vorteil, dass ein hoher Luftdurchsatz bei gleichzeitig geringen Abmessungen des Lüfters gefördert werden kann. Ein Nachteil ist die geringere Druckerhöhung. Aus diesem Grund muss der zu erwartende Druckverlust in den Kanälen abgeschätzt werden. Eine Berechnung für die in Tabelle 6-7 festgelegten Parameter der Kühlstruktur hat ergeben, dass aus einem Normvolumenstrom von  $200 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  ein Druckverlust im Stack von 587 Pa resultiert. Details der Berechnung sind im Anhang zu finden. Wegen des für Axiallüfter vergleichsweise hohen Druckniveaus und der geometrischen Abmaße des Stacks, wurde eine Lösung mit zwei DC-Axiallüftern des Typs EBM-Papst 3212-JH4 gewählt [124]. Details des Lüfters sind in Tabelle 6-8 zu finden.

**Tabelle 6-8: Datenblatt der ausgewählten Axiallüfter [124]**

Hersteller und Modell	EBM-Papst 3212 JH4
Spannungsart	DC
Nennspannung / V	12
Nennspannungsbereich / V	6 ... 13,8
Drehzahl / $\text{min}^{-1}$	13000 (max.)
Leistungsaufnahme / W	50 (max.)
Normvolumenstrom / $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$	280 (max.)

Wegen des zu erwartenden Betriebs bei Teillast, muss die vom Hersteller gegebene, unter Volllast ermittelte, Kennlinie erweitert werden. Dazu wurde auf einem Prüfstand des Forschungszentrums Jülich der ausgewählte Lüfter bei verschiedenen Leistungsaufnahmen betrieben und der Druckverlust mittels geeigneter Lochblenden variiert. Aus diesen so bestimmten Kennlinien und dem berechneten Druckverlust in den Kanälen lässt sich im Anschluss der Luftvolumenstrom bestimmen, der im Teillastbetrieb durch den Stack strömt. Die Ergebnisse der Druckverlustmessungen sind in Abbildung 6-11 dargestellt.



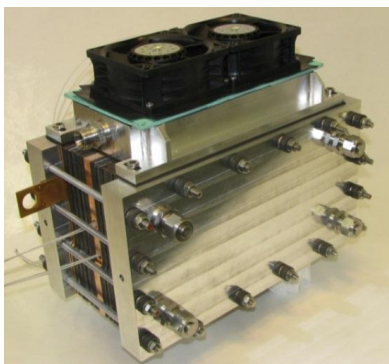
**Abbildung 6-11: Gemessene Lüfterkennlinien und berechneter Druckverlust in der Kanalstruktur im Vergleich mit der vom Hersteller gegebenen Lüfterkennlinie bei Volllast [124]**

Hieran ist zu erkennen, dass ein Lüfterbetrieb in Betriebsbereichen mit sehr hohem Volumenstrom oder Betriebsbereichen mit sehr hohem Druckverlust mit diesen Lüftern nicht möglich ist. Betriebspunkte in diesem Bereich konnten bei der Vermessung des Lüfters nicht angefahren werden. Im Schnittpunkt der aufgenommenen Druckverlustkennlinien mit dem Druckverlust über die Kanäle wird der Volumenstrom des Lüfters bestimmt. Insgesamt zeigt sich, dass der geforderte maximale Normluftvolumenstrom von  $184 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  durch den Einsatz von zwei Lüftern bei einer Leistungsaufnahme von 31 W pro Lüfter mit knapp über  $200 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  überboten wird. Eine ausreichende Luftversorgung zur Kühlung des Stacks ist also gewährleistet. Eine Abschätzung des maximal zu übertragenden Wärmestroms ( $> 2000 \text{ W}$ ) auf die Luft hat gezeigt, dass bei den hier verwendeten Volumenströmen ( $< 250 \text{ L min}^{-1}$ ) der Wärmeübergang nicht limitierend für den maximal abzuführenden Wärmestrom ( $1185 \text{ W}$ ) ist.

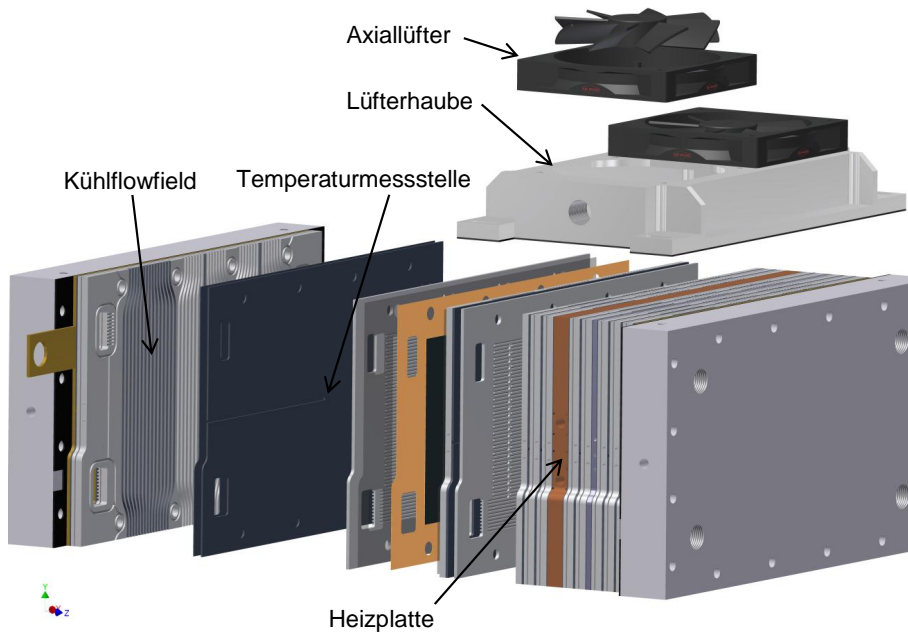
### 6.2.2 Versuchsaufbau

Der Stackaufbau entspricht weitestgehend dem in Tabelle 5-1 beschriebenen Stackaufbau. Statt der Verteiler- und Sammlermainifolds für das flüssige Wärmeträgermedium werden hier zwei Axiallüfter auf eine Haube montiert. Die kalte Umgebungsluft wird angesaugt, durch die Kanäle gedrückt und strömt am unteren Ende des Stacks frei aus. Der Versuchsaufbau und die Betriebsbedingungen für die Luftkühlungsuntersuchungen sind in Tabelle 6-9 aufgelistet. Eine CAD-Aufbauzeichnung des luftgekühlten HT-PEFC-Stacks ist in Abbildung 6-12 gezeigt.

**Tabelle 6-9: Versuchsaufbau und Betriebsbedingungen für die Luftkühlungsuntersuchung**

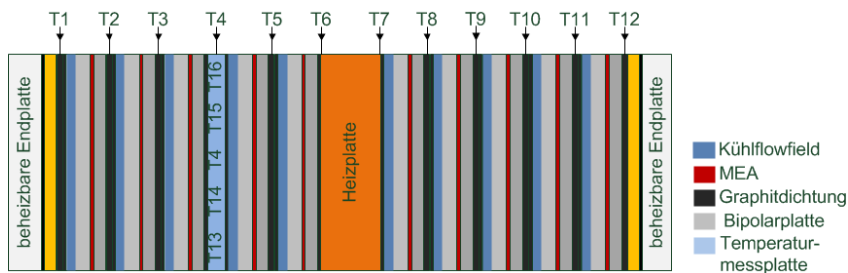


Zellenzahl	10
Aktive MEA-Fläche	$200 \text{ cm}^2$
MEA	BASF Celtec® P1000
Bipolarplatten	Graphit/Phenolharz-Komposit, Eisenhuth BBP4 [97]
Axiallüfter	2x EBM-Papst 3212-JH4
Wärmeträgermedium	Luft
Luft Eintrittstemperatur	Umgebungstemperatur
Aufheizen	8 Heizpatronen S/HS 100W, 42V [125]
Therm. Isolation	2-3 cm Silikonschaum
Kathodengas	Luft
Anodengas	Reformat (42 vol.% $\text{H}_2$ , 57 vol.% $\text{N}_2$ , 1 vol.% $\text{CO}$ )
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{Ref/Luft}} = 2/2$
Anoden-/Kathodengas-Eintrittstemp.	$160 \text{ }^\circ\text{C}$



**Abbildung 6-12: CAD-Aufbauzeichnung des luftgekühlten HT-PEFC-Stacks**

Ein Aufheizen auf Betriebstemperatur erfolgt mittels 8 Heizpatronen, die in den Endplatten (je 2 Stück) und einer mittig im Stack positionierten Heizplatte (4 Stück) integriert wurden. Die zur Temperaturmessung verwendeten Thermoelemente sind, wie in Kapitel 5.1.1.2 beschrieben, im Stack integriert. Die exakte Positionierung ist in Abbildung 6-13 gezeigt.



**Abbildung 6-13: Positionierung der Thermoelemente im Stack**

Der Stack wird in dem in Kapitel 4.1 beschriebenen Hydrogenics-Teststand eingebaut. Eine freie Zu- und Abfuhr der Kühlluft wurde sichergestellt.

### 6.2.3 Ergebnisse und Diskussion

Für den in Kapitel 6.2.2 beschriebenen Stackaufbau wurde mit den in Tabelle 6-10 beschriebenen Randbedingungen Strom/Spannungs-Kennlinien und die Temperaturverteilungen nach dem in Kapitel 5.1.2 genannten Prozedere aufgenommen.

**Tabelle 6-10: Randbedingungen zur Messung von Temperaturverteilungen und Strom/Spannungs-Kennlinien**

Messung	Summe der Leistungsaufnahme beider Lüfter / W	Summe des Normvolumenstroms beider Lüfter / $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$	Luft Eintritts-temperatur / $^{\circ}\text{C}$	Brenngas
1	5,2	40 <sup>1</sup>	21	Reformat
2	16,6	100 <sup>1</sup>	21	Reformat
3	31,2	140 <sup>1</sup>	21	Reformat
4	geregelt: 0 - 95	0-250 <sup>1</sup>	21	Reformat

Die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei einem konstanten Kühlluft Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{h}^{-1}$  ist in Abbildung 6-14 dargestellt. Für einen Betrieb bei Stromdichten unter  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  musste dem Stack zusätzlich mit Hilfe der Heizpatronen Wärme zugeführt werden um die Temperaturen über  $120^{\circ}\text{C}$  zu halten. Ab einer Stromdichte von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  wurde die Wärmezufuhr abgeschaltet.

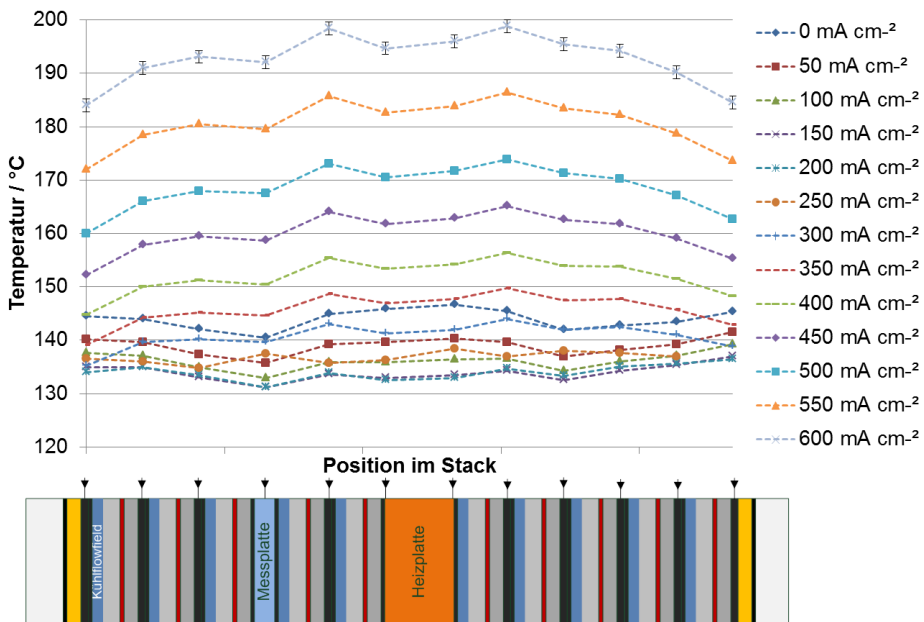
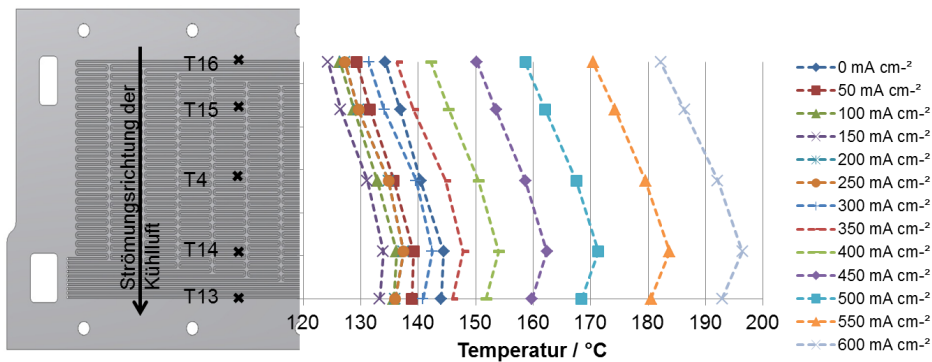
**Abbildung 6-14: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei einem konstanten Normluftvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{h}^{-1}$** 

Abbildung 6-14 zeigt, dass insbesondere im Bereich geringer Wärmeleistung bei niedrigen Stromdichten ( $< 300 \text{ mA cm}^{-2}$ ) die Temperaturen im Stack mit unter  $140^{\circ}\text{C}$  für

<sup>1</sup> Nach dem in Kapitel 6.2.1 beschriebenen Verfahren ermittelte Werte (vgl. Abbildung 6-11). Bei den hier auftretenden Betriebstemperaturen kann es zu weiteren Abweichungen vom realen Wert kommen.

einen Reformatbetrieb zu niedrig sind. Hier wäre eine stärkere Wärmezufuhr notwendig, falls ein dauerhafter Betrieb in diesen Bereichen angestrebt wird. Für die hier gezeigten, konstanten Eintrittsbedingungen wurde allerdings nur so viel Wärme zugeführt, wie für einen Stackbetrieb gerade so erforderlich ist, damit die Zellspannungen nicht unter 0,2 V sinken. Des Weiteren ist zu erkennen, dass mit steigender Stromdichte die Temperaturen im Stack stark ansteigen und schon bei einer Stromdichte über  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  die Betriebstemperaturgrenze überschreiten. Ein Betrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen 160 und  $180^\circ\text{C}$  ist bei einem konstanten Normluftvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  nur in einem Stromdichtebereich zwischen 450 und  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Ebenfalls kann ein Temperaturgradient von Zelle zu Zelle beobachtet werden, der im Maximum  $14,8 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $600 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt. Für einen intern an jeder Zelle gekühlten Stack ist dies vergleichsweise hoch, für einen sicheren Betrieb jedoch akzeptabel. Eine Temperaturdifferenz stellt sich auch in vertikaler Richtung über die aktive Fläche ein. Abbildung 6-15 zeigt die Temperaturverteilung gemessen in der Temperaturmessplatte bei einem konstanten Normluftvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ .

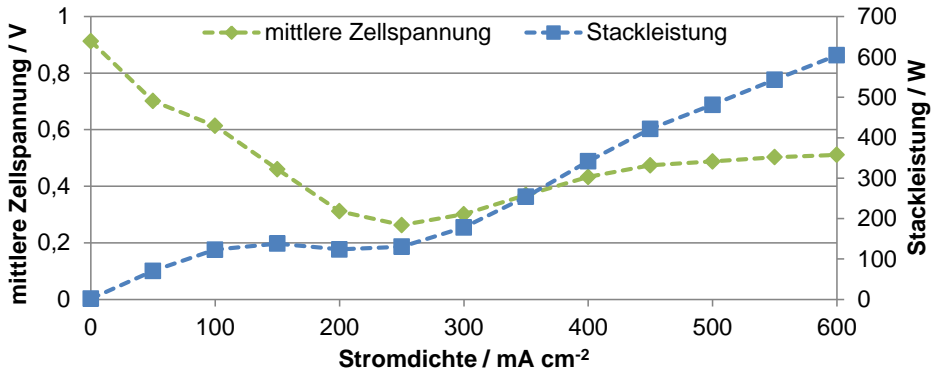


**Abbildung 6-15: Temperaturverteilung gemessen in der Temperaturmessplatte bei einem konstanten Kühlluft-Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$**

Die Temperaturen steigen von oben nach unten nahezu linear an und fallen zwischen den letzten beiden Messstellen wieder ab. Dies ist auf die fehlende thermische Isolierung am Boden des Stacks zurückzuführen, da dort die Luft ungehindert ausströmen muss. An der ersten Messposition am oberen Rand der aktiven MEA-Fläche werden Temperaturen von über  $120^\circ\text{C}$  gemessen. Die mit Umgebungstemperatur eintretende Luft erwärmt sich folglich beim Strömen durch die Lüfterhaube und den oberen für die Dichtung vorgesehenen Bipolarplattenbereich soweit, dass ein sicherer Betrieb, ohne die Gefahr der Entstehung von flüssigem Wasser im MEA-Bereich, gewährleistet wird. Der gemessene maximale Temperaturgradient beträgt  $14,2 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $600 \text{ mA cm}^{-2}$ . Dies ist vergleichsweise hoch und kann bei dauerhaftem Betrieb zu einer stärkeren Alterung führen [22, p. 115].

Durch die mit Umgebungstemperatur eintretende Kühlluft und den damit verbundenen niedrigen Stacktemperaturen bei Stromdichten unter  $450 \text{ mA cm}^{-2}$ , nimmt dieses Kühl-

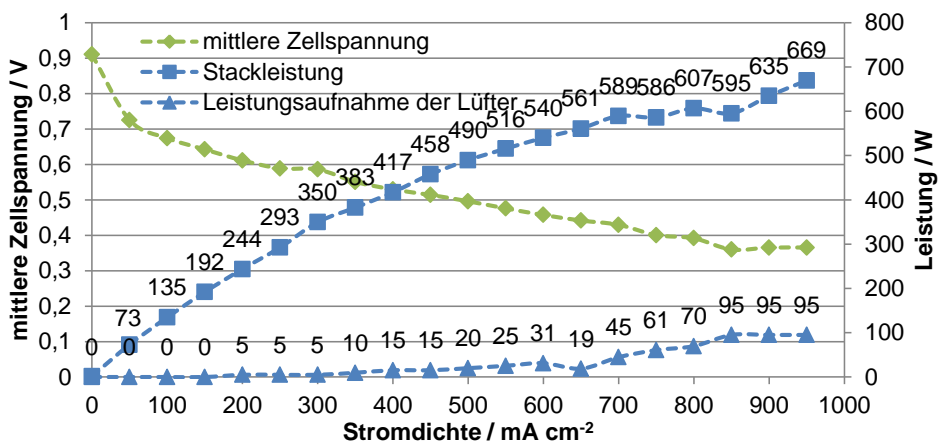
konzept starken Einfluss auf die Leistungserzeugung im Stack, wie in Abbildung 6-16 zu erkennen ist.



**Abbildung 6-16: Strom/Spannungs-Kennlinie und Stackleistung bei einem konstanten Kühlluft-Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$**

Aufgrund der sehr niedrigen Stacktemperaturen, fällt die mittlere Zellspannung bis zu einer Stromdichte von  $250 \text{ mA cm}^{-2}$  deutlich stärker ab. Danach steigt die mittlere Zellspannung wegen der Temperaturerhöhung an, bleibt aber insgesamt unter  $0,5 \text{ V}$ . Erst bei Temperaturen oberhalb der zulässigen Betriebstemperaturgrenze steigt die mittlere Zellspannung leicht über  $0,5 \text{ V}$ . Diese Effekte werden durch die Erhöhung des Volumenstroms noch verstärkt.

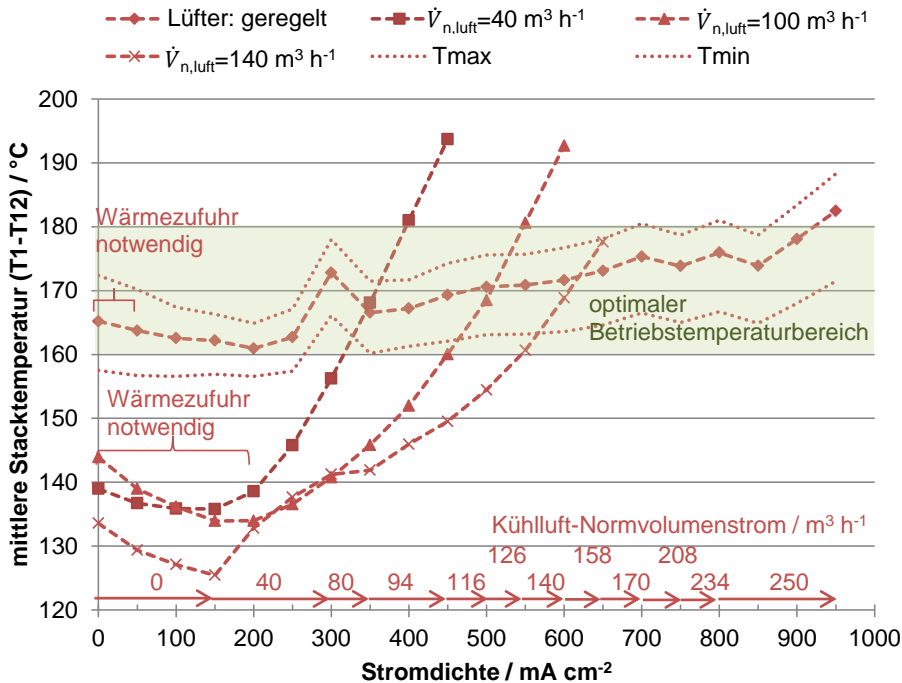
Nur durch eine Regelung des Kühlluftvolumenstroms lässt sich ein Stack mit diesem Kühlkonzept in einem großen Stromdichtebereich betreiben. In Abbildung 6-17 ist die Strom/Spannungs-Kennlinie und die Leistungserzeugung bei geregelter Normvolumenstrom zwischen  $0$  und  $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  dargestellt.



**Abbildung 6-17: Strom/Spannungs-Kennlinie, Stackleistung, Leistungsaufnahme der Lüfter bei geregelterm Kühlluft-Normvolumenstrom zwischen  $0$  und  $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$**



Anhand Abbildung 6-17 ist zu erkennen, dass der Stack bis zu einer Stromdichte von  $950 \text{ mA cm}^{-2}$  betrieben wurde. Die mittlere Zellspannung liegt im Stromdichtebereich bis  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  über  $0,5 \text{ V}$ . Die Peakleistung beträgt  $669 \text{ W}$ . Aufgrund der Regelung ist die parasitäre Leistungsaufnahme der Lüfter bis zu einer Stromdichte von  $750 \text{ mA cm}^{-2}$  auf deutlich unter  $10 \%$  beschränkt. Bei Stromdichten ab  $750 \text{ mA cm}^{-2}$  steigt die parasitäre Leistungsaufnahme der Lüfter auf über  $10 \%$  und beträgt maximal  $16 \%$ . Ein Stackbetrieb ist mit dem geregelten Kühlkonzept möglich, da die Temperaturen in einem weiten Stromdichtebereich in dem für Reformatbetrieb optimalen Temperaturbereich zwischen  $160$  und  $180 \text{ °C}$  liegen, wie Abbildung 6-18 zeigt.



**Abbildung 6-18: Vergleich der mittleren Stacktemperaturen bei geregelter und ungeregelter Kühlluftzufuhr**

Abbildung 6-18 zeigt, dass bei der geregelten Kühlung die mittlere Stacktemperatur im Betriebsbereich zwischen  $0$  und  $900 \text{ mA cm}^{-2}$  innerhalb des optimalen Betriebstemperaturbereichs (grün markiert) liegt. Bis zu einer Stromdichte von  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  muss dem Stack mit Hilfe der Heizpatronen zusätzlich Wärme zugeführt werden. Dies ist aber wesentlich weniger als bei der ungeregelten Kühlung bei der bis zu Stromdichten von  $200 \text{ mA cm}^{-2}$  Wärme zugeführt werden muss. Der Grund dafür ist die Regelung des Kühlluft-Normvolumenstroms bei niedrigen Stromdichten auf  $0 \text{ L min}^{-1}$ . Die aktive Kühlung ist also abgeschaltet. Trotzdem muss Wärme zugeführt werden, da die thermische Isolierung nicht ideal ist. Im Vergleich dazu wird bei der ungeregelten Kühlung auch bei

niedrigen Stromdichten kontinuierlich Wärme aktiv abgeführt. Der Betriebsbereich liegt bei der geregelten Kühlung ohne zusätzliche Wärmezufuhr zwischen 50 und 900 mA cm<sup>-2</sup> und ist damit wesentlich größer als dies bei der ungeregelten Kühlung der Fall ist.

#### 6.2.4 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Insgesamt eignet sich die Luftkühlung mittels axialer Lüfter, um einen reformatbetriebenen Stack mit 10 Zellen im gesamten Betriebsbereich zu kühlen. Für einen dynamischen Betrieb ist es notwendig, dass der Luftvolumenstrom geregelt wird. Hinzu kommt, dass ein Aufwärmen des Stacks nur mit Hilfe einer zusätzlichen Heizung möglich ist. Die Temperaturdifferenzen von Zelle zu Zelle sind mit maximal 15,4 K im Betriebspunkt 900 mA cm<sup>-2</sup> (0,37 V) im tolerierbaren Bereich. Die vertikal über die aktive MEA-Fläche gemessene Temperaturdifferenz beträgt 25,3 K im Betriebspunkt 900 mA cm<sup>-2</sup> (0,37 V). Eine deutlich höhere Alterung aufgrund der sehr hohen Temperaturdifferenz ist zu erwarten, wie Lücke gezeigt hat [22, p. 115]. Ein geregelter Betrieb ist in einem Stromdichtebereich von  $\Delta j_{(160^\circ\text{C} < T < 180^\circ\text{C})} \approx 900 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich.

Mit der hier gezeigten Auslegung des Kühlkonzeptes ist nur eine Regelung des Kühlluft-Normvolumenstroms möglich, da ein Aufheizen der Luft nicht vorgesehen ist. Prinzipiell ist aber auch eine Kühlung mit der Regelung der Eintrittstemperatur möglich. Wie eine rechnerische Abschätzung zeigt, kann auch bei einem konstanten Volumenstrom die Eintrittstemperatur geregelt werden. Die Details der Berechnung sind im Anhang zu finden (vgl. Tabelle A 7 und Tabelle A 8). In Abbildung 6-19 ist die rechnerisch bestimmte Stacktemperatur für beide Regelungen im Vergleich dargestellt.

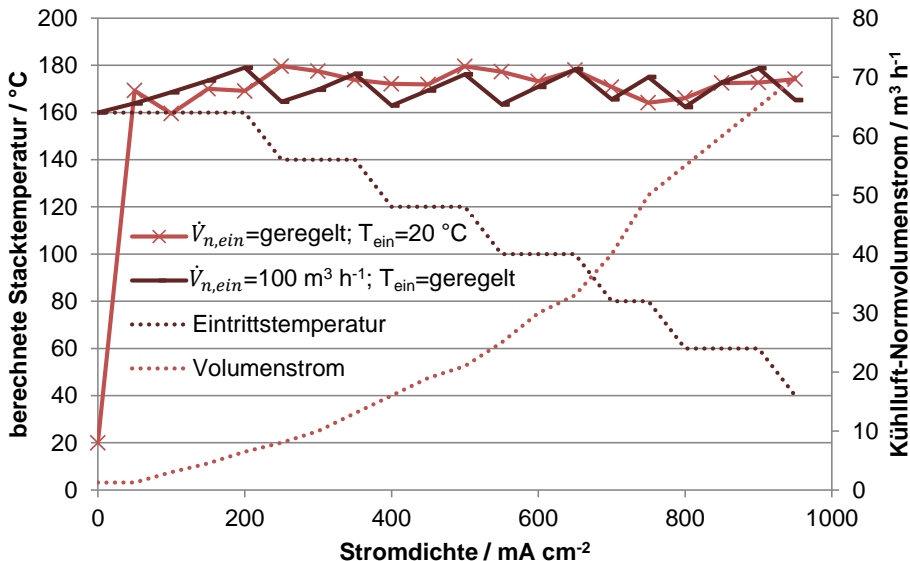
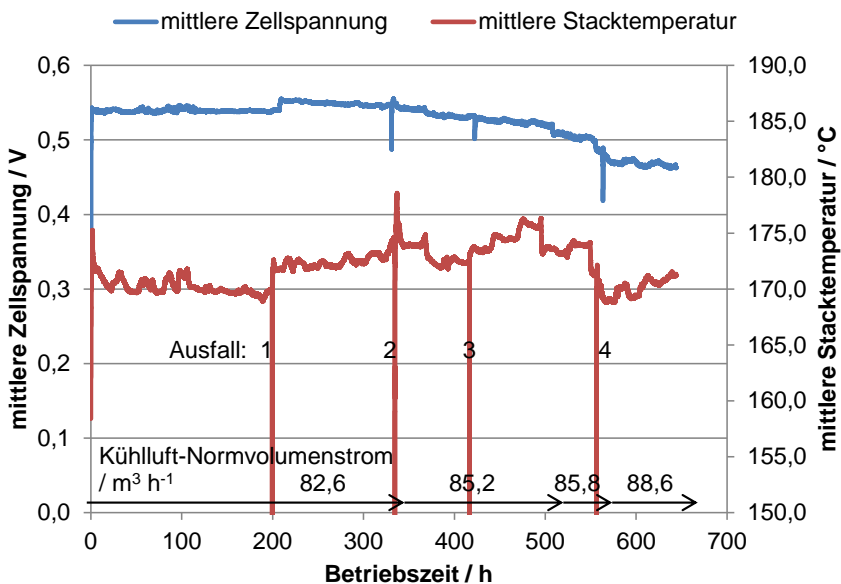


Abbildung 6-19: Rechnerisch bestimmter Vergleich der Stacktemperatur für die Regelung der Eintrittstemperatur und des Volumenstroms der Kühlluft

Hierbei wird deutlich, dass sowohl bei der Regelung der Eintrittstemperatur als auch des Volumenstroms der Kühlluft sich die Stacktemperatur im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen 160 und 180 °C im gesamten Stromdichtebereich befindet. Allerdings ist die berechnete Leistungsaufnahme der Lüfter aufgrund des in allen Stromdichtebereichen höheren Volumenstroms bei der Regelung der Eintrittstemperatur mindestens doppelt so groß (vgl. Tabelle A 9 im Anhang). Hinzu kommt, dass zur Erwärmung der eintretenden Luft ebenfalls Leistung benötigt wird. Für die in Abbildung 6-19 gezeigten Eintrittstemperaturen bei einem Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  beträgt die aufzubringende Heizleistung und damit auch die parasitäre Leistungsaufnahme zwischen 569 und 3982 W und übersteigt damit die erzeugte elektrische Leistung im Stack (vgl. Abbildung 6-17). Eine Regelung der Eintrittstemperatur ist somit nicht sinnvoll.

Bei unregulierten, konstanten Eintrittsbedingungen der Luft beträgt der für den Reformatbetrieb zulässige Stromdichtebereich  $\Delta j_{(160^\circ\text{C} < T < 180^\circ\text{C})} \approx 150 \text{ mA cm}^{-2}$ . Ein Betrieb mit konstantem, unreguliertem Luftvolumenstrom ist nur bei einem dauerhaft stationären Betrieb bei gleichbleibenden Umgebungsbedingungen zu empfehlen. Die Ergebnisse eines Dauerversuchs im Reformatbetrieb bei einer konstanten Stromdichte von  $400 \text{ mA cm}^{-2}$  sind in Abbildung 6-20 dargestellt.



**Abbildung 6-20: Zellspannungs- und Temperaturverlauf im Dauerversuch über 644 h; Reformatbetrieb bei einer Stromdichte von  $400 \text{ mA cm}^{-2}$ ,  $\lambda_{\text{Ref,Luft}}=2/2$**

Über die gesamte Betriebszeit von 644 h ist ein komplett unregelmäßiger galvanostatischer Betrieb nicht möglich. Aufgrund der Stackdegradation und dem damit verbundenen Absinken der mittleren Zellspannung steigt der abzuführende Wärmestrom an. Der für die Wärmeabfuhr notwendige Kühlluft-Normvolumenstrom muss daher im Verlauf leicht von

82,6 auf 88,6  $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$  erhöht werden. Abgesehen von den drei Volumenstromerhöhungen ist ein Betrieb bei konstantem Volumenstrom möglich. Dabei bleibt die mittlere Stacktemperatur über die gesamte Versuchszeit im optimalen Betriebstemperaturbereich. Die in Abbildung 6-20 zu erkennenden 4 Ausfälle sind auf drei Unterbrechungen der Reaktandengasversorgung im Teststand sowie eines Ausfalls der Teststandsteuerung zurückzuführen.

Insgesamt ist die interne Luftkühlung mit Hilfe von Axiallüftern geeignet, um Stacks mit einer aktiven Fläche von 200  $\text{cm}^2$  ausreichend zu kühlen. Wie Abbildung 6-17 zeigt, steigt aber die parasitäre Leistungsaufnahme durch die Lüfter ab einer erzeugten Leistung von über 590  $\text{W}_{\text{el}}$  auf über 10 % an. Mit dieser Kanalgeometrie ist demzufolge eine Luftkühlung mit Umgebungsluft bei Stacks der kW-Klasse energetisch nicht sinnvoll. Durch Anpassungen der Kanalstrukturen und der damit möglichen Druckverlustverringerung ist gegebenenfalls ein Betrieb bei Stacks im niedrigen kW-Bereich möglich. Erfahrungen bei der NT-PEFC zeigen, dass ein Einsatz der Luftkühlung nur bis zu Stackleistungen von maximal 2  $\text{kW}_{\text{el}}$  energetisch sinnvoll ist [21, 58, 59]. Ein weiterer Nachteil ist die Verwendung der abgeführten Wärme im System. Aufgrund des vergleichsweise niedrigen Wärmeübergangskoeffizienten von Luft, bedingt durch die im Vergleich mit flüssigen Wärmeträgermedien geringere Wärmeleitfähigkeit, ist die Wärmeeinkopplung im System ineffizienter. Außerdem kommt es wegen des Wärmetransportes durch Rohrleitungen zum Verbraucher zu steigenden Druckverluste und damit verbunden höheren parasitären Leistungsaufnahmen.

Als größter Vorteil der Luftkühlung, vor allem im Vergleich mit der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung, hat sich erwiesen, dass während des gesamten Versuches keinerlei Dichtungsprobleme aufgetreten sind.

## 6.3 Kathodenluftkühlung

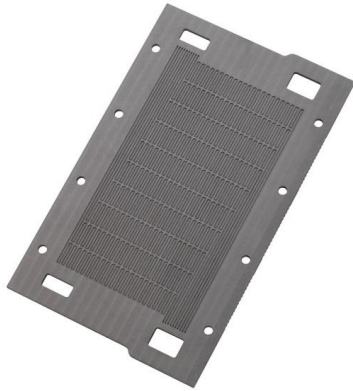
Die zweite Möglichkeit der internen Luftkühlung eines HT-PEFC-Stacks besteht darin, die ohnehin notwendigen Kanalstrukturen für die Kathodenluft zur Kühlung zu verwenden. Dazu ist es notwendig, den Kathodenluftstrom deutlich zu erhöhen. Bisher sind nach diesem Konzept einige HT-PEFC-Stacks untersucht und gebaut worden. Der Leistungsbereich ist bei allen aber auf maximal 1  $\text{kW}_{\text{el}}$  beschränkt und die aktive MEA-Fläche beträgt maximal 50  $\text{cm}^2$  [29, 30, 49-51]. Erfahrungen aus dem NT-PEFC-Bereich zeigen jedoch, dass eine Kühlung von Stacks mit einer Leistung von mehr als 5 kW nicht ausreichend oder vorteilhaft ist [21, 59]. Ebenso zeigen die Untersuchungen aus Kapitel 6.2, dass bei dem hier untersuchten Stack die parasitäre Leistungsaufnahme durch die Lüfter auf über 10 % ab einer erzeugten Leistung von über 590  $\text{W}_{\text{el}}$  ansteigt. Aus diesem Grund sollen im Folgenden nur rechnerisch die Rahmenbedingungen für eine Kühlung mit erhöhtem Kathodenluftmengenstrom betrachtet werden.

### 6.3.1 Berechnung des notwendigen Kathodenluftüberschusses

Wie die Energiebilanz zeigt, wird nur ein geringer Anteil der Wärme (< 3 %) bei  $\lambda_{\text{Ref,Luft}}=2/2$  durch die Kathodenluft ausgetragen, da die Eingangstemperatur der Luft auf 160 °C

festgelegt wurde (vgl. Kapitel 3.3). Für die Betrachtung eines 10-zelligen HT-PEFC-Stacks mit einer aktiven Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  wird daher festgelegt, dass die Kathodenluft mit Umgebungstemperatur ( $25^\circ\text{C}$ ) einströmt. Die bei der Berechnung der notwendigen Kathodenluftmenge festgelegten Randbedingungen sind in Tabelle 6-11 aufgelistet.

**Tabelle 6-11: Festgelegte Randbedingungen zur Berechnung des notwendigen Kathodenluftmengenstroms für die Stackkühlung**



Kühlflowfield/Kathodenflowfield  
auf der Kathodenbipolarplatte

Zellenzahl im Stack	10
Kühlung	Luftkühlung jeder Zelle mit erhöhtem Kathodenluftstrom
Aktive MEA-Fläche	$200 \text{ cm}^2$ (110 mm x 182 mm)
Kühlkanalgeometrie (Kathodenflowfield)	10 Parallelmäander-Kanäle (1 mm x 1 mm) pro BPP
Länge der Kühlkanäle	1059,4 mm (pro Kanal)
Wärmeträgermedium	Luft
Luft Eintrittstemperatur	$25^\circ\text{C}$ (Umgebungstemperatur)

Für die in Abbildung 6-9 dargestellten abzuführenden Wärmeströme soll mit Hilfe der Energiebilanz aus Kapitel 3.3 der zur Kühlung notwendige Luftmassenstrom unter Verwendung der Gleichung (3-23) berechnet werden. Die Ergebnisse für den Betriebsbereich von 0 bis  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  sind in Tabelle 6-12 aufgelistet.

**Tabelle 6-12: Zur Kühlung berechneter notwendiger Luftmassenstrom und Kathodenluftstöchiometrie**

$j / \text{mA cm}^{-2}$	$\dot{Q}_{ab} / \text{W}$	$T_{\text{Umgebung, Luft}} / ^\circ\text{C}$	$T_{\text{Stack}} / ^\circ\text{C}$	$\dot{V}_{n, \text{Luft}} / \text{m}^3 \text{h}^{-1}$	$\lambda_{\text{Luft}} / -$
0	0	25	160	0,0	0
50	53	25	160	1,4	11
100	115	25	160	2,8	12
150	182	25	160	4,6	13
200	257	25	160	6,7	14
250	334	25	160	8,5	14
300	415	25	160	10,6	15
350	500	25	160	13,1	15
400	589	25	160	15,3	16
450	681	25	160	17,7	16
500	778	25	160	20,2	17
550	876	25	160	22,7	17
600	976	25	160	25,5	17
650	1080	25	160	28,0	18
700	1185	25	160	30,9	18

Wie Tabelle 6-12 zeigt, beträgt die notwendige Kathodenstöchiometrie zwischen 11 und 18 bei einer Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretender Luft von 135 K.

### 6.3.2 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Wie in Kapitel 6.2 gezeigt wurde, ist der parasitäre Leistungsverlust durch die Lüfter schon bei geraden Kanälen mit bis zu 16 % sehr hoch. Für ein Parallelmäander-Flowfield wie es hier verwendet wird, steigt der Druckverlust und damit die parasitären Leistungsverluste weiter an. Eine Simulation des Druckverlustes in der Kanalstruktur von Kvesic [115] hat einen Wert von 149,8 Pa bei einem vergleichsweise geringen Luftlambda von 2 ergeben. Eine Möglichkeit zur Reduzierung des Druckverlustes könnte eine offene Kathodenkanalstruktur mit geraden Kanälen sein. Es bleiben jedoch die schon in Kapitel 6.2 genannten Nachteile der relativ hohen parasitären Leistungsverluste bei Stacks der kW-Klasse bestehen. Ein weiterer Nachteil ist, dass bei den hier berechneten hohen Luftvolumenströmen, die mit Umgebungstemperatur einströmen, eine Abkühlung der MEA im Luft Eintrittsbereich auf kritische Werte unter 120 °C möglich ist. Im Vergleich mit der Luftkühlung in separaten Kanälen kommt die zur Kühlung notwendige Luft direkt mit der MEA in Kontakt. Im Gegensatz dazu ist die MEA-Temperatur bei der Kühlung mit separaten Kanälen bedingt durch den Wärmeübergang von der Kanalwand an die Luft höher und somit in den hier gemessenen nicht kritischen Temperaturbereichen (vgl. Kapitel 6.2.3).



## 7 Wasserkühlung

Die Wasserkühlung ist im Wesentlichen eine aktive interne Kühlung mit einem flüssigen Wärmeträgermedium. Im Vergleich zu der in Kapitel 5 untersuchten Wärmeträgerflüssigkeit kommt es bei dem Einsatz von Wasser zu einem Phasenwechsel, wenn das Kühlsystem bei Umgebungsdruck betrieben wird, da die Stacktemperaturen über 100 °C liegen. Prinzipiell muss deionisiertes Wasser eingesetzt werden, da eine elektrische Leitfähigkeit des Wärmeträgermediums zu parasitären Strömen im Stack führt. Der Vorteil von Wasser gegenüber Wärmeträgerflüssigkeit ist, dass es im Falle von Leckagen im Kühlsystem nicht zwangsläufig zu einer irreversiblen Schädigung der MEA kommt. Problematisch ist in dem Zusammenhang der Eintrag von flüssigem Wasser in der MEA, da dies einen erhöhten Phosphorsäureaustrag zur Folge hat.

Eine bei Umgebungsdruck betriebene interne Wasserkühlung mit separaten Kühlkanälen, bei der das Wasser flüssig bleibt, ist mit den Betriebsbedingungen der HT-PEFC nicht realisierbar. Aus der Dampftafel von Wasser [93] ergibt sich für einen Druck von 1 bar eine maximale Wassertemperatur von 99,6 °C, die nicht überschritten werden darf, um einen Phasenwechsel zu vermeiden. Die Eintrittstemperatur des Wassers muss also unterhalb dieses Grenzwertes liegen. Außerdem muss der Massenstrom so groß gewählt werden, dass die Temperaturerhöhung im Wärmeträgermedium gering bleibt. Bei einem Brennstoffzellenaufbau wie er in Kapitel 5.1.1.1 beschrieben wird, besteht zwischen MEA-Temperatur und Wärmeträgertemperatur nur ein sehr geringer Unterschied, da die Wärmeleitfähigkeit der eingesetzten Materialien und die Kühlung unmittelbar auf der Rückseite der Kathodenbipolarplatte die Temperaturdifferenz auf unter 5 K beschränken, wie auch die Rechnung in Kapitel 5.2.1 zeigt. Dies bedeutet, dass die MEA-Temperaturen unter 120 °C liegen und damit ein Stackbetrieb nicht möglich ist. Andererseits würde ein sehr niedriger Massenstrom des Kühlwassers zu einer hohen Temperaturdifferenz im Wasser führen. Um MEA-Temperaturen von 160 °C zu erreichen, müsste es in jedem Fall zur Verdampfung von Wasser kommen. Eine interne Wasserkühlung bei Umgebungsdruck ohne Phasenwechsel ist bei einem Einsatz in der HT-PEFC nicht möglich.

Die Komplexität aufgrund des Phasenwechsels ist ein Grund dafür, dass es zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur eine experimentelle Untersuchung zur Wasserkühlung für einen HT-PEFC-Stack gibt [33]. Auch im kommerziellen HT-PEFC-Stackbereich existiert keine Stackkühlung mit reinem Wasser als Kühlmedium. In diesem Kapitel wird deshalb eine theoretische Betrachtung der Möglichkeiten einer Wasserkühlung untersucht. Wie Abbildung 2-1 zeigt, gibt es zwei Optionen der Wasserkühlung: mit oder ohne Phasenwechsel. Wie sich in diesem Kapitel zeigt, ist eine Bedruckung des Kühlkreislaufes für beide Systeme notwendig.

Teile dieses Kapitels sind im Rahmen einer Masterarbeit im Forschungszentrum Jülich in Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Energiesysteme und Energiewirtschaft der Ruhr Universität Bochum entstanden [126].

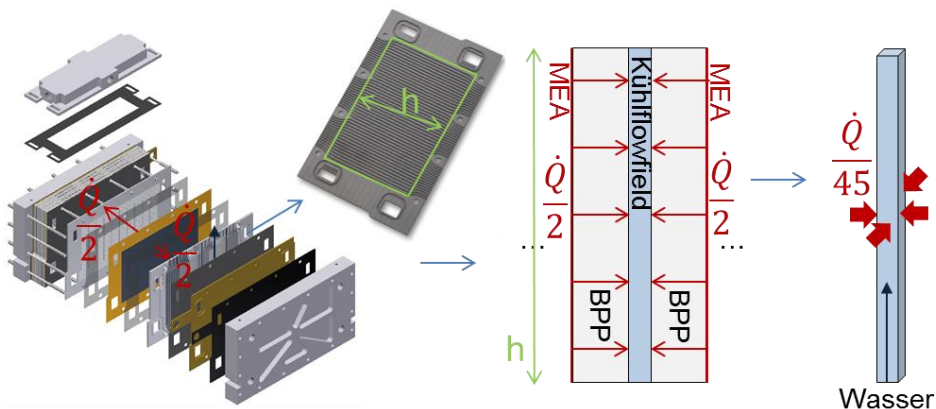


## 7.1 Parameter der Auslegung einer Wasserkühlung

Um eine Vergleichbarkeit mit den in dieser Arbeit untersuchten Kühlkonzepten zu gewährleisten, soll in diesem Kapitel eine Wasserkühlung für einen 10-zelligen HT-PEFC-Stack mit einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  betrachtet werden. Das Stackdesign entspricht dem in Kapitel 5.1.1.1 für die interne aktive Wärmeträgerflüssigkeitskühlung vorgestellten. Der durch das Kühlsystem abzuführende Wärmestrom im Reformatbetrieb kann daher mit Hilfe der Energiebilanz berechnet werden und wurde bereits in Abbildung 6-9 dargestellt. Prinzipiell sollen in diesem Kapitel die für die Realisierbarkeit wichtigen Parameter einer Wasserkühlung analytisch berechnet werden. Der als Referenz dienende 10-zellige HT-PEFC-Stack wird für die Berechnungen abstrahiert. Dazu wurden folgende Annahmen getroffen:

- Es wird lediglich die Kühlkanalstruktur im Bereich der aktiven MEA-Fläche berücksichtigt, das heißt, dass jede elektrochemisch aktive Zelle von 45 geraden rechteckigen Kanälen gekühlt wird.
- Das Kühlwasser wird gleichmäßig auf alle Kanäle verteilt.
- Die Temperaturdifferenz ( $\approx 0,37 \text{ K}$ ) aufgrund der Wärmeleitung zwischen MEA und Kanalwand wird vernachlässigt (vgl. Kapitel 4.2).
- Der Wärmeübergang findet über die gesamte Kanalwand gleichmäßig statt.
- Ziel der Berechnung ist eine mittlere MEA-Temperatur im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen  $160$  und  $180 \text{ }^\circ\text{C}$ .
- Die Berechnungen erfolgen für stationäre Zustände im Stromdichtebereich von  $0$  bis  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  (vgl. Abbildung 6-9).

Mit diesen Annahmen kann der zu berechnende HT-PEFC-Stack nach Abbildung 7-1 abstrahiert werden.



**Abbildung 7-1: Modellbildung für die Berechnung einer Wasserkühlung**

Da alle Kanäle gleiche geometrische Abmaße besitzen und parallel angeordnet sind, kann die Berechnung im Folgenden für einen Kanal durchgeführt werden. Die gezeigten Ergebnisse werden dann für einen 10-zelligen Stack hochgerechnet. Die Durchströmung

der Kanäle erfolgt von unten nach oben, da dies bei der Berechnung der Wasserkühlung mit Phasenwechsel den effektivsten Wärmeübergang gewährleistet. Bei einer Abwärtsströmung sind die Wärmeübergangskoeffizienten im Mittel 25 % niedriger, da die Strömungsgeschwindigkeit des Dampfes aufgrund der Auftriebskräfte abnimmt [94, 127]

## 7.2 Wasserkühlung ohne Phasenwechsel

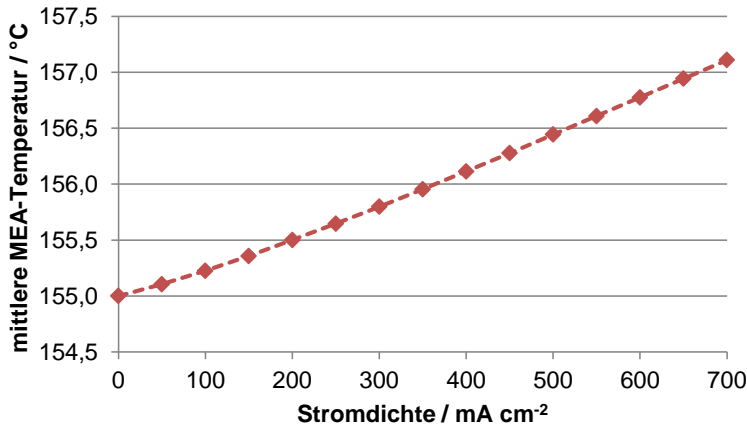
Wie bereits beschrieben, kommt es bei dem Einsatz von Wasser unter Umgebungsdruckbedingungen zu einem Phasenwechsel von der flüssigen in die dampfförmige Phase oder die Stacktemperaturen sind auf unter 120 °C beschränkt. In diesem Abschnitt soll die Möglichkeit einer Kühlung mit flüssigem Wasser betrachtet werden. Dazu muss der geschlossene Kühlkreislauf bedruckt werden. Dabei wird der Effekt der steigenden Sättigungstemperatur bei steigendem Druck genutzt. Dies ermöglicht eine Kühlung des Stacks wie es auch mit Wärmeträgerflüssigkeit möglich ist (vgl. Kapitel 5.1). Analog zur Wärmeträgerflüssigkeitskühlung sollte die Eintrittstemperatur des Wassers nicht zu stark unterhalb des optimalen Betriebstemperaturbereichs liegen, da sonst die Stacktemperaturen nicht mehr innerhalb des optimalen Betriebstemperaturbereichs liegen (vgl. Abbildung 5-8). Aus diesem Grund kommen Eintrittstemperaturen zwischen 150 und 160 °C in Frage. Im Folgenden wird für die Berechnung eine feste Wassereintrittstemperatur von 155 °C gewählt. Des Weiteren wird für die Abschätzung die Annahme getroffen, dass sich das Kühlwasser um 5 K zwischen Ein- und Austritt aus dem Kühlkanal erwärmt (vgl. Messungen aus Kapitel 5.1.2 mit Wärmeträgerflüssigkeit).

Als erstes wird der zur Wärmeabfuhr notwendige Volumenstrom für den Betriebspunkt mit dem größten abzuführenden Wärmestrom berechnet. Der maximale Wärmestrom beträgt nach Abbildung 6-9 1185 W für den 10-zelligen Stack, bzw. 2,6 W pro Kanal bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$ . Bei einer angenommenen Temperaturerhöhung des Wassers im Kanal von 5 K beträgt der nach Gleichung (3-20) berechnete notwendige Gesamtvolumenstrom für den Stack  $3,6 \text{ L min}^{-1}$ .

Zur Überprüfung, ob mit dem berechneten Volumenstrom und der Eintrittstemperatur des Wassers eine ausreichende Wärmeübertragung an die Kanäle sichergestellt ist, wird mit der in Kapitel 3.4 vorgestellten Methode die maximal abzuführende Wärmemenge bestimmt. Mit den hier gewählten Randbedingungen kann ein maximaler Wärmestrom von 4050 W abgeführt werden und ist damit wesentlich größer als der notwendig abzuführende Wärmestrom.

Um in jedem Fall einen Phasenwechsel zu vermeiden, muss der Druck im Kühlkreislauf mindestens dem aus der Dampftafel entnommenen Sättigungsdampfdruck bei der Austrittstemperatur entsprechen [128]. In diesem Zustand liegt die Flüssigkeit gesättigt vor. Allerdings führt eine geringfügig höhere Wärmezufuhr zur Verdampfung. Im realen Stackbetrieb sollte zur Gewährleistung der Sicherheit ein höherer Druck gewählt werden. Zusätzlich muss noch der Druckverlust in den Kanälen überwunden werden, der einen Anteil bezogen auf den Gesamtdruck von unter 1 % aufweist. Für die hier gewählten Randbedingungen beträgt der notwendige aufzubringende Gesamtdruck 6,18 bar.

Mit der Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit von der Stromdichte ergibt sich der in Abbildung 7-2 dargestellte mittlere Temperaturverlauf.



**Abbildung 7-2: Berechnete mittlere MEA-Temperatur bei einer Wassereintrittstemperatur von 155 °C**

Hieran ist zu erkennen, dass die Stacktemperatur mit steigender Stromdichte zunimmt. Insgesamt ist der Anstieg mit 2,1 K jedoch gering. Dem zugrunde liegt die Annahme, dass sich das Kühlwasser zwischen Ein- und Austritt um 5 K erhöht. Eine Kühlung von HT-PEFC-Stacks ist folglich im gesamten Betriebsbereich möglich.

### 7.3 Wasserkühlung mit Phasenwechsel

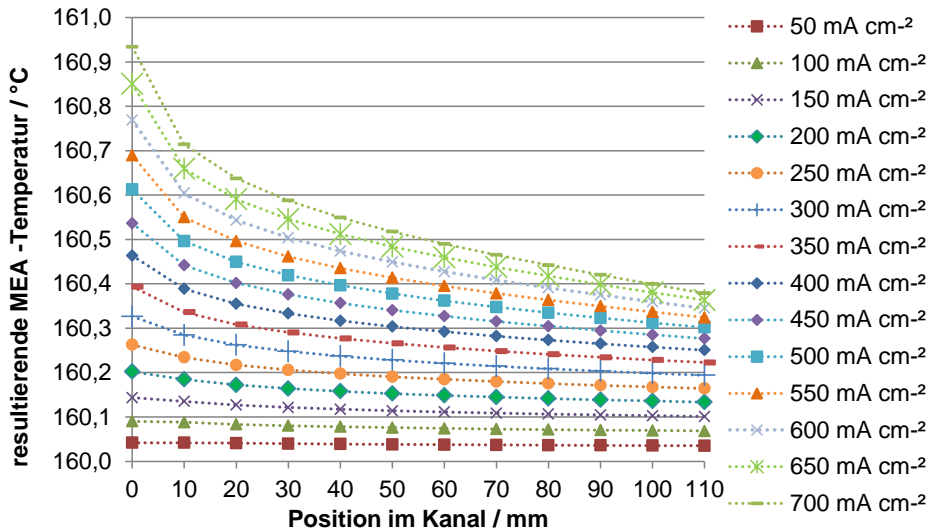
Bei der Kühlung unter Berücksichtigung des Phasenwechsels wird das Wasser in den in Kapitel 7.1 beschriebenen separaten Kanälen verdampft. Dabei muss die in der MEA erzeugte Wärme die Verdampfungsenthalpie des Wassers aufbringen, um dieses isotherm und isobar vom flüssigen in den gasförmigen Zustand zu bringen. Hier wird direkt der Vorteil der Verdampfungskühlung deutlich, da diese isotherm abläuft. Die Folge ist eine sehr homogene Temperaturverteilung entlang des Kanals und damit über der aktiven Fläche, wie dieses Kapitel zeigen soll. Um diese Bedingung zu erfüllen, muss das Wasser flüssig und bei einer Eintrittstemperatur geringfügig unterhalb der gewünschten Betriebstemperatur eintreten. Damit das Wasser unmittelbar im Eintritt des Kanals beginnt zu verdampfen, muss das Druckniveau im Kühlkreislauf dem Sättigungsdampfdruck des Wassers im Eintrittsbereich entsprechen. Für die folgenden Abschätzungen wird eine Wassereintrittstemperatur von 160 °C gewählt. Der Sättigungsdruck beträgt bei dieser Temperatur 6,18 bar. Würde eine Verdampfung des Wassers bei Umgebungsdruck erfolgen, käme es zu dem bereits beschriebenen Problem der unzulässig niedrigen Stacktemperatur unter 100 °C. Im Gegensatz zu dem in Kapitel 7.2 untersuchten Kühlsystem unter Druck beträgt der Massenstrom des Wassers nicht dem zur vollständigen Wärmeabfuhr notwendigen Massenstrom. Der Grund ist, dass bei festgelegtem Massenstrom auf den lokalen Dampfgehalt des Wassers bei der

Durchströmung der Kühlkanäle geschlossen werden kann. Der Massenstrom muss so gewählt sein, dass der Strömungsdampfgehalt  $\dot{x} \leq 0,7$  beträgt, um eine gleichmäßige Wärmeabfuhr über den gesamten Kanal zu ermöglichen. Bei einem größeren Strömungsdampfgehalt geht das Blasensieden in Filmsieden über und die verbliebene Flüssigkeit löst sich von der Strömungswand. Die Folge ist eine verringerte Wärmeübergangskoeffizient und damit eine Verschlechterung des Wärmeübergangs. Eine detaillierte Erläuterung ist in [126] zu finden. Aufgrund der geometrischen Abmaße der Kanäle kann der zweiphasige Wärmeübergang nicht mit den herkömmlichen Methoden für Makrokanäle berechnet werden, sondern muss mit einer Korrelation für Mikrokanäle bestimmt werden [129]. Die Strömungsform im Kanal entspricht nach [130, 131] der gestreckten Blasenströmung. Unter Berücksichtigung der Randbedingungen der hier betrachteten Kühlung für einen HT-PEFC-Stack eignet sich die Korrelation von Zhang et al. [132] am besten zur Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten im Kanal, da der Anwendungsbereich der Korrelation die Randbedingungen des Kühlsystems am genauesten erfasst.

Bei der Wasserkühlung mit Phasenwechsel läuft die Kühlung durch die Kanalstrukturen nach folgendem Prinzip ab:

- Wasser tritt gesättigt bei einer Eintrittstemperatur von 160 °C und einem Druck von 6,18 bar von unten in den Kanal mit einem konstanten Massenstrom ein.
- Über die Kanallänge verdampft das Wasser kontinuierlich und nimmt dabei Wärme auf.
- Der Strömungsdampfgehalt erhöht sich dabei abhängig vom zugeführten Wärmestrom (Betriebspunkt) und der Position im Kanal.
- Der Wärmeübergangskoeffizient ist ebenfalls abhängig vom Dampfgehalt und ändert sich über die Kanallänge.
- Im Austritt aus dem Kanal muss der Strömungsdampfgehalt kleiner als 0,7 sein, damit die kritische Wärmestromdichte nicht erreicht wird.

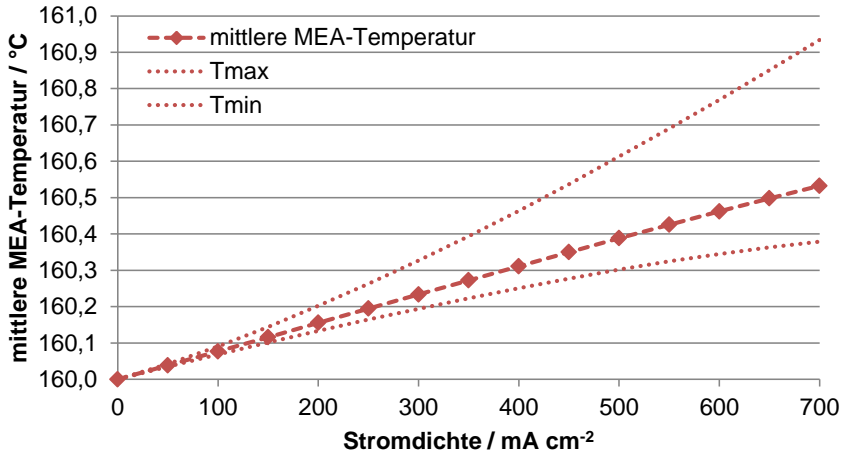
Der lokale zweiphasige Wärmeübergangskoeffizient für jeden Betriebspunkt kann mit dem lokalen Strömungsdampfgehalt, der Siedetemperatur, der festgelegten Massenstrom, der Kanalgeometrie und unter Verwendung der interpolierten Stoffwerte bestimmt werden. Die Korrelationen nach Zhang et al. [132] bzw. Chen [133] verfolgen den Superpositionsansatz. Bei dem Superpositionsansatz werden die Effekte Blasensieden und konvektiver Wärmeübergang miteinander addiert und die Gewichtung der Effekte über einen Abschwächungsfaktor und einen Verstärkungsfaktor vorgenommen [129]. Der Wärmeübergangskoeffizient setzt sich aus den beiden unabhängig voneinander ablaufenden Mechanismen des Blasensiedens und des konvektiven Wärmeübergangs zusammen. Die Berechnung ist im Anhang zu finden. Abhängig von der erzeugten Wärmeleistung nimmt der zweiphasige Wärmeübergangskoeffizient für die Betriebspunkte zwischen 0 und 700 mA cm<sup>-2</sup> Werte zwischen 3369 und 8895 W m<sup>-2</sup> K<sup>-1</sup> an. Hinzu kommt, dass der Wärmeübergangskoeffizient über die Kanallänge wegen des steigenden Strömungsdampfgehaltes zunimmt. Der maximale Strömungsdampfgehalt beträgt im Austritt aus dem Kanal  $\dot{x}=0,527$ . Damit ergibt sich die nach Gleichung (3-21) berechnete Temperaturverteilung über der Kanallänge, die in Abbildung 7-3 dargestellt ist.



**Abbildung 7-3: Berechnete MEA-Temperaturverteilung über der Kanallänge bei einer Wassereintrittstemperatur von 160 °C und einem Druck von 6,18 bar**

Abbildung 7-3 zeigt, dass am Kanaleintritt die höchsten Temperaturen vorliegen und diese über die Kanallänge kontinuierlich absinken. Das Absinken resultiert aus dem über die Kanallänge größer werdenden zweiphasigen Wärmeübergangskoeffizienten. Grundsätzlich steigt die Temperatur mit steigendem abzuführenden Wärmestrom an. Insgesamt sind die berechneten Temperaturdifferenzen zwischen Kanaleintritt und -austritt mit maximal 0,6 K sehr gering. Dies ist mit der hohen Wärmeabfuhr aufgrund des Phasenübergangs zu begründen. Die Temperaturverteilung auf der MEA ist demzufolge nahezu homogen.

Über den gesamten Betriebsbereich ergibt sich für die Wasserkühlung mit Phasenwechsel die in Abbildung 7-4 gezeigte Temperaturverteilung.



**Abbildung 7-4: Berechnete mittlere MEA-Temperatur über der Stromdichte für eine Wassereintrittstemperatur von 160 °C und einem Druck von 6,18 bar**

Insgesamt ist der Temperaturanstieg mit steigendem abzuführenden Wärmestrom mit 0,53 K sehr gering. Eine Kühlung ist im gesamten Betriebsbereich sowohl mit einer nahezu homogenen Temperaturverteilung über die MEA als auch über den gesamten Betriebsbereich möglich. Das Kühlkonzept mit einer internen Wasserkühlung unter Berücksichtigung des Phasenwechsels eignet sich prinzipiell sehr gut, um HT-PEFC-Stacks der kW-Klasse zu temperieren.

## 7.4 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Wie Kapitel 7 zeigt, ist die Kühlung eines HT-PEFC-Stacks im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen 160 und 180 °C nur unter erhöhtem Druck (> 6 bar) im separaten Kühlkreislauf möglich. Vorteile des untersuchten Konzeptes ohne Phasenwechsel ist die Möglichkeit der Kühlung großer aktiver Flächen und damit Stackts der kW-Klasse. Ein Aufheizen des Stackts auf Betriebstemperatur ist ebenfalls möglich. Hinzu kommt der Vorteil, dass die Gefahr der MEA-Schädigung bei Leckagen verringert wird. Dies gilt ebenfalls für das Konzept unter Berücksichtigung des Phasenwechsels. Hier ist die praktisch konstante Temperatur über die MEA-Fläche als größter Vorteil zu nennen, welches auch die Kühlung sehr großer aktiver Flächen ermöglicht. Ein Nachteil bei der Kühlung mit Phasenwechsel ist die komplexe Regelung des eintretenden Wassermassenstroms, um die gleichmäßige Verdampfung zu gewährleisten.

Beide hier untersuchten Konzepte ermöglichen eine Kühlung im gesamten Betriebsbereich eines HT-PEFC-Stackts der kW-Klasse. Nachteilig ist jedoch der aufzubringende Systemdruck von über 6 bar. Bei einer Stackkonstruktion ist daher die Druckgeräteverordnung zu beachten [134]. Hinzu kommt, dass die bisher eingesetzten Graphit-Komposit-Materialien eine sehr geringe Druckfestigkeit ( $\sigma=76 \text{ N mm}^{-2}$ ) aufweisen.

Aufgrund des notwendigen hohen Druckniveaus erfolgt keine weitere Berücksichtigung dieses Kühlkonzeptes.

## 8 Vergleich und Bewertung der untersuchten Kühlkonzepte

In den Kapiteln 5, 6 und 7 wurden verschiedene Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks mit Wärmeträgerflüssigkeit, Luft und Wasser untersucht. In diesem Kapitel werden die Kühlkonzepte verglichen und bewertet. Dazu werden zunächst die bei der Bewertung betrachteten Anforderungen definiert. Anschließend findet ein Vergleich der physikalischen Eigenschaften der Wärmeträgermedien statt. Darauf aufbauend wird der Einfluss der Kühlkonzepte hinsichtlich des Kühlungspotentials für Stacks im kW-Bereich verglichen und bewertet. Abschließend werden die als geeignet identifizierten Kühlkonzepte bezüglich der Eignung zur Kühlung von Stacks zur Bordstromerzeugung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem analysiert und die Kühlkonzepte mit dem größten Potential identifiziert.

### 8.1 Anforderungen an die Kühlkonzepte

In den vorangegangenen Kapiteln wurden Untersuchungen durchgeführt, um die folgenden Fragestellungen zu beantworten:

1. Ist das Kühlkonzept für den Einsatz in der HT-PEFC geeignet?
2. Ist eine ausreichende Kühlung für Stacks der kW-Klasse gewährleistet?
3. Welches Kühlkonzept eignet sich für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit?

Aus der in Kapitel 2 beschriebenen Literatur lassen sich Kühlkonzepte identifizieren, die für die Kühlung einer HT-PEFC geeignet sind. Dies sind die in Abbildung 2-1 gezeigten Kühlkonzepte, die prinzipiell zur Kühlung von HT-PEFCs einsetzbar sind. Aus den Fragen zur ausreichenden Kühlung für Stacks der kW-Klasse und dem Einsatz im System zur Bordstromerzeugung lassen sich Anforderungen an das Kühlkonzept definieren.

Dabei ergeben sich Einflussfaktoren für die Kühlkonzepte, die durch die HT-PEFC, das System und die Anwendung bedingt sind. Die durch die Kühlung zu erfüllenden Randbedingungen sind:

- Die Brennstoffzelle soll zur Bordstromerzeugung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem<sup>2</sup> verwendet werden. Eine Dimensionierung der Kühlung für Stacks der kW-Klasse ist erforderlich.
- Die Anwendung erfordert einen dynamischen Betrieb. Daraus folgt, dass der Stack von Umgebungstemperatur auf eine Betriebstemperatur von mindestens 120 °C aufgeheizt werden muss. Außerdem ist eine Kühlung bei einer variablen Leistungserzeugung im Bereich 0 bis 5 kW<sub>el</sub> zu gewährleisten.

---

<sup>2</sup> Dimensionierung des Reformers zur Brenngaserzeugung für eine Leistungserzeugung der Brennstoffzelle von mindestens 1 kW<sub>el</sub>.



- Durch den Reformatbetrieb und der damit verbundenen notwendigen Toleranz gegenüber Kohlenmonoxid (1 Vol.-% im Reformat) sollte die Betriebstemperatur optimalerweise 160 °C nicht unterschreiten.
- Die Betriebstemperaturobergrenze liegt bei 180°C bedingt durch die Restriktionen der eingesetzten Materialien und der bei Temperaturen über 180 °C deutlich erhöhten Degradationsrate der MEA [22, p. 93].
- Systembedingte Anforderungen sind eine möglichst effiziente weitere Verwendung des abzuführenden Wärmestroms, eine möglichst geringe Komplexität des Kühlsystems und eine möglichst geringe parasitäre Leistungsaufnahme durch das Kühlsystem.

Zur Einhaltung der geforderten Betriebsbedingungen gibt es folgende Einflussmöglichkeiten auf die Kühlung:

- Wahl des Wärmeträgermediums (Wärmeträgerflüssigkeit, Luft, Wasser)
- Auswahl des Kühlkonzeptes
- Eingesetzte Stackmaterialien und Dimensionierung des Stacks
- Volumenstrom und Eintrittstemperatur des Kühlmediums

Bei der in Abbildung 3-2 gezeigten Strom/Spannungs-Kennlinie ist ein kontinuierlicher Abfall der Zellspannung mit steigender Stromdichte festzustellen. Damit reduziert sich mit steigender Stromdichte der Wirkungsgrad der Stromerzeugung. Bei einem Stackbetrieb im Stromdichtebereich oberhalb von 700 mA cm<sup>-2</sup> ist die mittlere Zellspannung geringer als 0,4 V und resultiert somit in einen Zellenwirkungsgrad von unter 32 %. Damit ergibt sich für die Bewertung der Kühlsysteme, dass eine Betriebstemperatur zwischen 160 und 180 °C in einem Stromdichtebereich von 0 bis 700 mA cm<sup>-2</sup> gewährleistet werden soll. Die in den Kapiteln 5, 6 und 7 untersuchten Kühlkonzepte werden somit hinsichtlich der in diesem Abschnitt definierten Anforderungen verglichen und bewertet.

### 8.2 Einfluss des Wärmeträgermediums

Die Auswahl des Wärmeträgermediums beeinflusst die mit der Kühlung einzustellenden Betriebsbedingungen. Die für die Kühlung wichtigsten Stoffeigenschaften sind die Wärmeleitfähigkeit und die Wärmekapazität. Die Wärmeleitfähigkeit limitiert den Wärmeübergang von der Brennstoffzelle auf das Wärmeträgermedium. Bei einer hohen Wärmeleitfähigkeit kann bei gleicher Geometrie und gleichen Strömungsbedingungen (Eintrittstemperatur, Massenstrom) mehr Wärme bei gleicher Temperaturdifferenz zwischen Strömungskanalwand und Kühlmedium übertragen werden. Die Wärmekapazität limitiert die Wärmemenge, die mit Hilfe des Wärmeträgermediums abgeführt werden kann, solange der Wärmeübergang nicht den limitierenden Faktor darstellt. Bei gleichem Massenstrom und gleicher Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Kühlmedium kann mit einer höheren Wärmekapazität mehr Wärme abgeführt werden.

In Tabelle 8-1 sind für die in dieser Arbeit untersuchten Wärmeträgermedien Luft, Wasser und Wärmeträgerflüssigkeit die Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität aufgelistet. Damit

kann der notwendige Volumenstrom berechnet werden, der für eine Abfuhr von 1 kW thermischer Leistung notwendig ist, wenn die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Kühlmedium auf 10 K festgelegt wird. Für diesen Volumenstrom kann der Druckverlust in der verwendeten Kanalstruktur (vgl. Tabelle 3-1) eines 20-zelligen Stacks berechnet werden. Aus dem Druckverlust ( $\Delta p$ ) und dem Volumenstrom ( $\dot{V}$ ) ergibt sich die hydraulische Leistung ( $P_h$ ) durch Volumenarbeit nach Gleichung (8-1) für Flüssigkeiten. Für Gase kann die pneumatische Leistung (theoretische Lüfterleistung) bei einer Isentropen Zustandsänderung nach Gleichung (8-2) mit Hilfe von Gleichung (8-3) berechnet werden [135].

$$P_h = \dot{V} \cdot \Delta p \quad (8-1)$$

$$P_p = \dot{m} \cdot C_p \cdot (T_{aus,ideal} - T_{ein}) \quad (8-2)$$

$$\frac{T_{aus,ideal}}{T_{ein}} = \left( \frac{p_{aus}}{p_{ein}} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \quad (8-3)$$

Die hydraulische bzw. pneumatische Leistung ist ein Maß für die aufzubringende Leistung ohne die mechanischen Verluste der notwendigen Pumpen oder Lüfter. Zusätzlich ist in Tabelle 8-1 der notwendige Druck im Kühlkreislauf aufgelistet.

**Tabelle 8-1: Kenndaten verschiedener Wärmeträgermedien**

	Luft	Wasser (flüssig)	Wärmeträger- flüssigkeit
Wärmeleitfähigkeit bei 160°C [60, 94]	0,036 W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	0,682 W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	0,158 W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
Wärmekapazität bei 160 °C [60, 94]	1019 J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	4338 J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	2250 J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
Volumenstrom zur Abfuhr von 1 kW <sub>th</sub> ( $\Delta T_{aus-ein}=10$ K)	7325,9 L min <sup>-1</sup>	1,5 L min <sup>-1</sup>	3,0 L min <sup>-1</sup>
Druckverlust in der Kühlkanalstruktur (900 Kanäle)	12,00 mbar	0,02 mbar	0,38 mbar
Hydraulische / pneumatische Leistung	145 W	0,04 mW	1,9 mW
Notwendiger Druck im Kühlsystem	1 bar	> 6 bar	1 bar

Bei einer Temperatur von 160 °C ist sowohl die Wärmeleitfähigkeit als auch die Wärmekapazität für Luft am niedrigsten und die von flüssigem Wasser am höchsten. Dadurch ergibt sich, dass der zur Wärmeabfuhr notwendige Volumenstrom bei Luft mit

$7325,9 \text{ L min}^{-1}$  deutlich höher liegt als bei den flüssigen Kühlmedien mit  $1,5$  und  $3,0 \text{ L min}^{-1}$ . Mit Hilfe des Volumenstroms lässt sich für die hier angenommene Kühlkanalgeometrie (vgl. Tabelle 3-1) der Druckverlust berechnen. Aufgrund des hohen Luftvolumenstroms ist der Druckverlust bei der Verwendung von Luft mit  $12 \text{ mbar}$  am höchsten. Der Druckverlust bei flüssigem Wasser ist mit  $0,02 \text{ mbar}$  am niedrigsten und liegt wegen der niedrigen dynamischen Viskosität ( $1,72 \cdot 10^{-4} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) auch noch eine Größenordnung unter dem Druckverlust von  $0,38 \text{ mbar}$  bei der Verwendung von Wärmeträgerflüssigkeit ( $\eta = 1,9 \cdot 10^{-3} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ). Damit ergeben sich auch die in Tabelle 8-1 aufgelisteten Unterschiede in der aufzubringenden hydraulischen und pneumatischen Leistung. Die Folge ist, dass mehr Volumenarbeit verrichtet werden muss, wenn das Wärmeträgermedium Luft eingesetzt wird. Zur Durchströmung der Kühlkanalstruktur ist eine Druckdifferenz zwischen Kanaleintritt und -austritt erforderlich. Diese muss mindestens dem berechneten Druckverlust entsprechen. Bei einem Ausströmen gegen Umgebungsdruck ( $1 \text{ bar}$ ) ist aufgrund des geringen Druckverlustes in der hier verwendeten Kanalstruktur der Gesamtdruck nur geringfügig höher als der Umgebungsdruck. Die Untersuchungen der Kühlkonzepte mit Wasser (vgl. Kapitel 7) haben allerdings gezeigt, dass sowohl für die Verdampfungskühlung als auch für die Kühlung mit flüssigem Wasser der Druck im Kühlkreislauf mehr als  $6 \text{ bar}$  betragen muss. Damit ist für das Wärmeträgermedium Wasser ein höherer Druck im Kühlkreislauf im Vergleich zu den beiden anderen betrachteten Wärmeträgermedien unvermeidlich. Wegen der schon in Kapitel 7.4 beschriebenen Problematik der Festigkeit der eingesetzten Materialien und der zu beachtenden Druckgeräteverordnung [134] scheidet Wasser für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit aus.

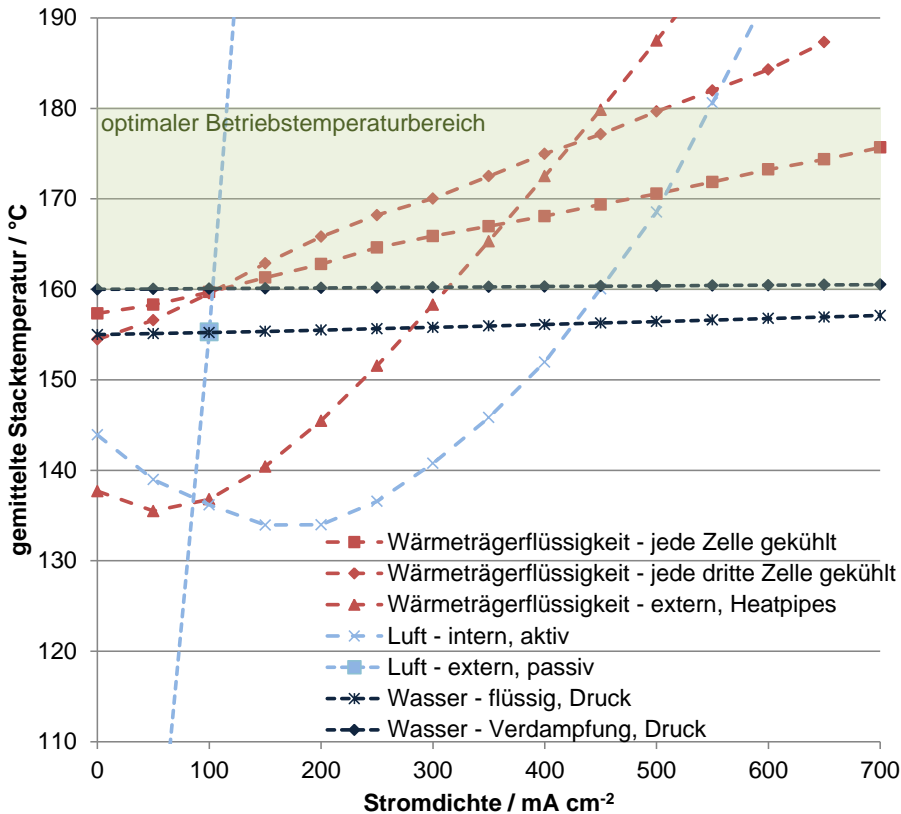
### 8.3 Einfluss des Kühlkonzeptes

In Kapitel 8.1 wurde ein Betriebstemperaturbereich zwischen  $160$  und  $180 \text{ °C}$  in einem Stromdichtebereich zwischen  $0$  und  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  definiert, welcher das Kühlsystem abdecken soll. Ob dies für die hier untersuchten Kühlkonzepte (vgl. Kapitel 5, 6 und 7) gilt, kann mit Hilfe der in diesen Kapiteln ermittelten Temperaturverläufe über der Stromdichte beurteilt werden. Dies erfolgt zuerst für unregelmäßige, konstante und anschließend für geregelte Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien.

Für unregelmäßige Eintrittsbedingungen (Eintrittstemperatur und Volumenstrom konstant) der Kühlmedien ist die mittlere Stacktemperatur über der Stromdichte in Abbildung 8-1 dargestellt. Ausgewählt und dargestellt wurden die Temperaturverläufe, bei denen ohne eine Regelung der Eintrittsbedingungen ein möglichst großer Stromdichtebereich abgedeckt wird, in dem sich die Temperaturen im optimalen Betriebstemperaturbereich befinden. Die Werte wurden entweder experimentell oder durch Berechnungen und 3D-CFD-Simulationen ermittelt (vgl. Tabelle 8-2). Die Eintrittsbedingungen für das Kühlmedium sowie die Untersuchungsmethode sind in Tabelle 8-2 aufgelistet. Alle in diesem Kapitel verglichenen und bewerteten Stacks weisen eine aktive Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  auf und wurden mit synthetischem Reformat und Luft betrieben (vgl. Tabelle 3-1).

**Tabelle 8-2: Eintrittsbedingungen für das Wärmeträgermedium sowie die Untersuchungsmethode**

<b>Wärmeträgermedium</b>	<b>Kühlkonzept</b>	<b>Untersuchungsmethode</b>	<b>Eintrittstemperatur</b>	<b>Volumenstrom</b>
Wärmeträgerflüssigkeit	Jede Zelle gekühlt (Kapitel 5.1)	Experiment	160 °C	4 L min <sup>-1</sup>
Wärmeträgerflüssigkeit	Jede dritte Zelle gekühlt (Kapitel 5.2)	Berechnung + Experiment	160 °C	2 L min <sup>-1</sup>
Wärmeträgerflüssigkeit	Extern, Heatpipes (Kapitel 5.3)	Simulation + Experiment	120 °C	6 L min <sup>-1</sup>
Luft	Intern, separate Kanäle in BPP (Kapitel 6.2)	Experiment	21 °C	100 m <sup>3</sup> h <sup>-1</sup>
Luft	Extern, passiv (Kapitel 6.1)	3D-CFD-Simulation	25 °C	-
Wasser	Flüssig, intern, separate Kanäle (Kapitel 7.2)	Berechnung	155 °C	3,6 L min <sup>-1</sup>
Wasser	Mit Phasenwechsel, intern, separate Kanäle (Kapitel 7.3)	Berechnung	160 °C	0,8 kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>



**Abbildung 8-1: Mittlere Stacktemperatur bei unregelmäßigen Eintrittsbedingungen ( $T_{\text{ein}}$  und  $\dot{V}_{\text{ein}}$  konstant) der Wärmeträgermedien für Betriebsbedingungen (siehe Tabelle 8-2) die einen Stackbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich in einem möglichst großen Stromdichtebereich gewährleisten**

In dem grün markierten optimalen Betriebstemperaturbereich ist ein Betrieb im gesamten Stromdichtebereich nur mit der Wasserkühlung unter Berücksichtigung des Phasenwechsels sowie in weiten Teilen für die interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder Zelle (100 – 700 mA cm<sup>-2</sup>) und jeder dritten Zelle (100 – 500 mA cm<sup>-2</sup>) gewährleistet. Der Temperaturverlauf der Wasserkühlung ohne Phasenwechsel könnte bei höheren Eintrittstemperaturen des Wassers ebenfalls im geforderten Betriebstemperaturbereich liegen, jedoch ist dafür eine weitere Druckerhöhung im Kühlkreislauf notwendig. Für die externe Heatpipe-unterstützte Wärmeträgerflüssigkeitskühlung (320 – 460 mA cm<sup>-2</sup>), und die beiden Luftkühlkonzepte (450 – 550 mA cm<sup>-2</sup> und 60 – 75 mA cm<sup>-2</sup>) ist der Stromdichtebereich bei den hier gewählten unregelmäßigen Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien für einen dynamischen Stackbetrieb zu gering.

Die in Abbildung 8-1 dargestellten Verläufe werden durch die in Tabelle 8-2 angegebenen konstanten Eintrittsbedingungen maßgeblich beeinflusst. Durch eine Änderung des Volumenstroms oder der Eintrittstemperatur der Wärmeträgermedien ergeben sich andere Stromdichtebereiche, in denen ein Betrieb im geforderten Betriebstemperaturbereich möglich ist. Die Auswertung aller in Kapitel 5, 6 und 7 ermittelten Temperaturverteilungen ergibt die in Tabelle 8-3 aufgelistete minimale und maximale Stromdichte bei der ein Betrieb mit konstanten Eintrittsbedingungen des Wärmeträgermediums möglich ist. Zusätzlich ist, analog zu dem in Abbildung 8-1 exemplarisch angegebenen, der Stromdichtebereich aufgelistet in dem ein Stackbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich bei ungeregelten Eintrittsbedingungen mit dem jeweiligen Kühlkonzept möglich ist.

**Tabelle 8-3: Mit dem jeweiligen Kühlkonzept im optimalen Betriebstemperaturbereich ermöglichter Stromdichtebereich bei ungeregelten Eintrittsbedingungen**

Wärmeträger-medium	Kühlkonzept	Minimale Stromdichte ( $T > 120\text{ °C}$ ) / $\text{mA cm}^{-2}$	Maximale Stromdichte ( $T < 180\text{ °C}$ ) / $\text{mA cm}^{-2}$	Stromdichte -bereich $\Delta j$ ( $160\text{--}180\text{ °C}$ ) / $\text{mA cm}^{-2}$
Wärmeträger-flüssigkeit	Jede Zelle gekühlt (Kapitel 5.1)	0	>1000	850
Wärmeträger-flüssigkeit	Jede dritte Zelle gekühlt (Kapitel 5.2)	0	850	700
Wärmeträger-flüssigkeit	Extern, Heatpipes (Kapitel 5.3)	0	500	150
Luft	Intern, separate Kanäle in BPP (Kapitel 6.2)	50	900	100
Luft	Extern, passiv (Kapitel 6.1)	60	115	15
Wasser	Flüssig, intern, separate Kanäle (Kapitel 7.2)	0	>700	>700
Wasser	Mit Phasenwechsel, intern, separate Kanäle (Kapitel 7.3)	0	>700	>700

Anhand der minimalen Stromdichte, bei der die Stacktemperaturen über  $120\text{ °C}$  liegen, wird deutlich, dass sich sowohl Wärmeträgerflüssigkeit als auch Wasser eignen, um den Stack auf die erforderliche Betriebstemperatur aufzuwärmen. Wie auch die Untersuchungen von Andreasen und Kaer belegen [29], ist bei der Verwendung von Umgebungsluft zusätzlich der Einsatz von Heizpatronen oder die Vorwärmung der Luft notwendig.

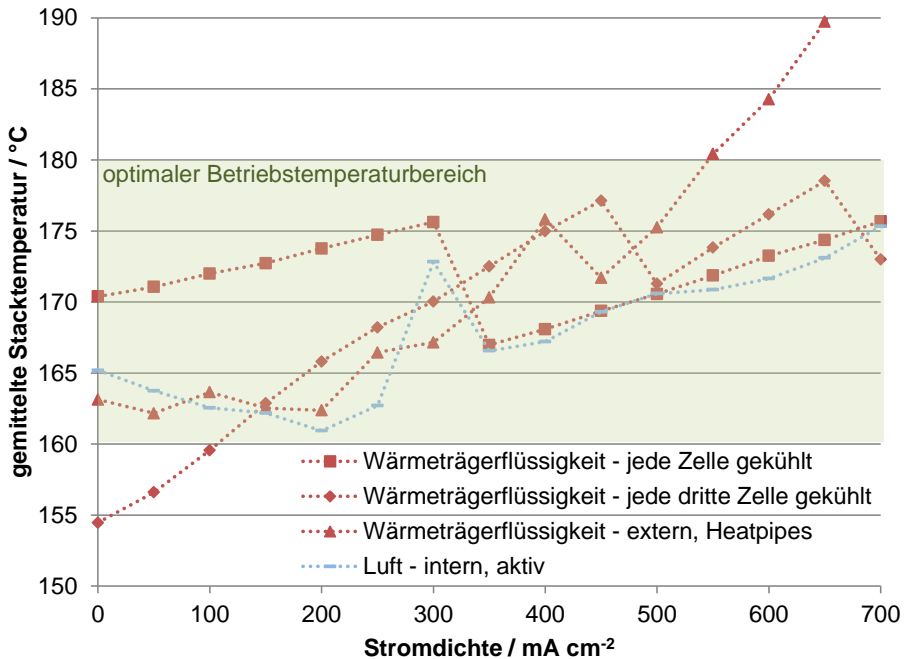
Die Auswertung der maximalen Stromdichte, bei der die Stacktemperaturen unter der Betriebstemperaturgrenze von  $180\text{ °C}$  liegen, zeigt, dass bis auf die externe Kühlung mit Heatpipe-Unterstützung und die externe passive Kühlung, eine ausreichende Kühlung bei Stromdichten von  $700\text{ mA cm}^{-2}$  oder höher gewährleistet ist. Die rechnerische

Abschätzung der Heatpipe-unterstützten externen Kühlung (vgl. Kapitel 5.3.2.2) zeigt jedoch, dass ein Betrieb auch bei diesen Stromdichten möglich ist, wenn die Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit auf 60 °C verringert würde. Aufgrund der niedrigen maximalen Stromdichte ( $115 \text{ mA cm}^{-2}$ ), bei der noch eine externe passive Kühlung eines HT-PEFC-Stacks mit  $200 \text{ cm}^2$  aktiver MEA-Fläche möglich ist, eignet sich dieses Stackkonzept in Anbetracht der definierten Anforderungen nicht.

Die Ergebnisse der Untersuchungen des maximalen Stromdichtebereichs, bei dem eine unregelmäßige Kühlung eingesetzt werden kann und die Betriebstemperaturen zwischen 160 und 180 °C liegen, bestätigen das schon in Abbildung 8-1 aufgezeigte Verhalten, dass ein unregelmäßiger Betrieb der Kühlung nur mit der Wasserkühlung und der internen Kühlung mit Wärmeträgerflüssigkeit möglich ist. Unter Berücksichtigung einer möglichen Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien erweisen sich aber alle untersuchten Kühlkonzepte mit Wärmeträgerflüssigkeit und die interne aktive Luftkühlung prinzipiell als geeignet. Für diese vier Konzepte ist in Abbildung 8-2 der Temperaturverlauf bei geregelten Eintrittsbedingungen (Tabelle 8-4) der Wärmeträgermedien dargestellt.

**Tabelle 8-4: Eintrittsbedingungen des Wärmeträgermediums**

Wärmeträger-medium	Kühlkonzept	Untersuchungsmethode	Eintritts-temperatur	Volumen-strom
Wärmeträger-flüssigkeit	Jede Zelle gekühlt (Kapitel 5.1)	Experiment	geregelt	$4 \text{ L min}^{-1}$
Wärmeträger-flüssigkeit	Jede dritte Zelle gekühlt (Kapitel 5.2)	Berechnung + Experiment	geregelt	$2 \text{ L min}^{-1}$
Wärmeträger-flüssigkeit	Extern, Heatpipes (Kapitel 5.3)	Simulation + Experiment	geregelt	$6 \text{ L min}^{-1}$
Luft	Intern, separate Kanäle in BPP (Kapitel 6.2)	Experiment	21 °C	geregelt



**Abbildung 8-2: Mittlere Stacktemperatur über der Stromdichte bei geregelten Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien**

Aufgrund der Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien erweitert sich der Stromdichtebereich, in dem ein Betrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich möglich ist. Bis auf die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung ist durch das Kühlsystem ein Betrieb im gesamten Stromdichtebereich zwischen 0 und 700 mA cm<sup>-2</sup> bei optimalen Betriebstemperaturen sichergestellt. Bei der Heatpipe-unterstützten externen Kühlung zeigen die rechnerischen Abschätzungen für Betriebspunkte oberhalb 550 mA cm<sup>-2</sup>, dass mit Eintrittstemperaturen der Wärmeträgerflüssigkeit von 60 °C sich der Betriebsbereich auch auf diese Stromdichten erweitern würde.

Prinzipiell zeigt der Vergleich der Kühlkonzepte, dass die Kühlkonzepte die Wärmeträgerflüssigkeit verwenden und die interne aktive Luftkühlung geeignet sind. Im gesamten Stromdichtebereich ist durch die Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien eine Kühlung auf Temperaturen zwischen 160 und 180 °C möglich. Wasser ist potentiell ebenfalls sehr gut geeignet, wird aber aufgrund des notwendigen Drucks im Kühlsystem nicht weiter betrachtet.

## 8.4 Einfluss des Systems

In dieser Arbeit wurden keine gezielten Untersuchungen bezüglich des Gesamtsystems, mit den Komponenten Brennstoffzellenstack und Brenngaserzeugungssystem durchgeführt. Um eine Bewertung hinsichtlich des Einflusses der geeigneten



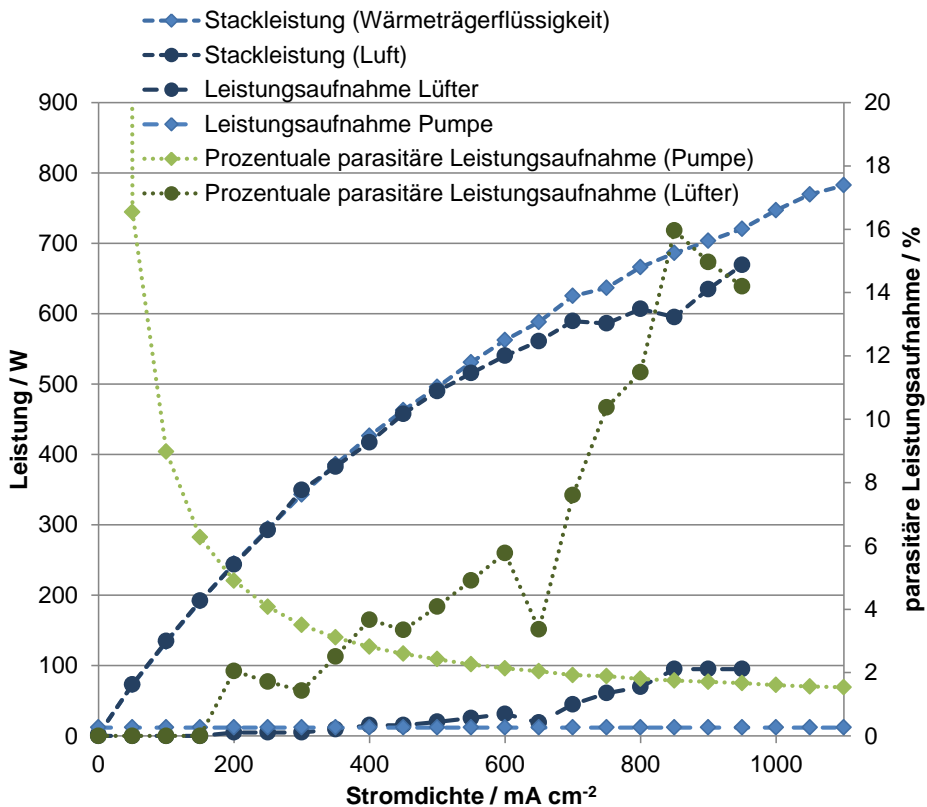
Kühlkonzepte auf das Gesamtsystem abgeben zu können wurde eine quantitative, nicht-monetäre Analysemethoden gewählt [136]. Dabei werden die bisher als geeignet eingestuften Kühlsysteme, die drei wärmeträgerflüssigkeitsgekühlten Konzepte und die interne aktive Luftkühlung mit separaten Kanälen, miteinander verglichen. Mit Hilfe der einfachen Nutzwertanalyse [137] sollen die systembedingten Anforderungen an das Kühlsystem bewertet werden. Dabei werden die verschiedenen Optionen auf ihren Erfüllungsgrad hin eingeordnet. Die hier betrachteten Optionen sind das Schädigungspotential des gewählten Wärmeträgermediums für die MEA, die möglichst effiziente weitere Verwendung des abzuführenden Wärmestroms, die möglichst geringe Komplexität des Kühlsystems und die möglichst geringe parasitäre Leistungsaufnahme durch das Kühlsystem. Die Einordnung erfolgt durch eine Punktevergabe basierend auf den Untersuchungen der Kapitel 5 und 6. Zusätzlich wird jedem Bewertungskriterium ein individueller Gewichtungsfaktor zugeordnet. Ziel ist es, die als geeignet identifizierten Kühlmethoden bezüglich des Einflusses auf das System zu bewerten. Die Analyse ist aufgrund des Punktevergabesystems subjektiv und kann je nach Betrachtungsweise auch zu einem anderen Ergebnis führen, wenn beispielsweise die Analyse aus der Betrachtungsweise des Anwenders erfolgt. Das Ergebnis der Nutzwertanalyse ist in Tabelle 8-5 dargestellt.

**Tabelle 8-5: Nutzwertanalyse zur Beurteilung der Systemanforderungen an das Kühlkonzept**

schlecht: 0-2 mittel: 3-5 gut: 6-8 sehr gut: 9	Wärmeträgerflüssigkeit			Luft	Gewichtungs- faktor
	Intern, in BPP	Intern, gekapselt	Extern, Heatpipes	Intern, in BPP	
	Erfüllungs- grad	Erfüllungs- grad	Erfüllungs- grad	Erfüllungs- grad	
Schädigungspotential für die MEA	2	6	7	9	5
Komplexität / Dichtungsanforderung	4	7	5	8	4
Verwendbarkeit der Wärme im System	7	7	5	2	6
Parasitäre Leistungsaufnahme	6	6	7	1	8
<b>Ergebnis</b>	<b>104</b>	<b>142</b>	<b>141</b>	<b>97</b>	

Wie in Tabelle 8-5 zu erkennen, ist die Verwendung von Wärmeträgerflüssigkeit für die Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem am besten geeignet. Im Vergleich zum Wärmeträgermedium Luft, weist Wärmeträgerflüssigkeit ein höheres Schädigungspotential im Falle einer Leckage und dem Eindringen in sensible Bereiche auf. Allerdings ist die Gefahr von Leckagen abhängig vom gewählten

Kühlkonzept und nur bei der aktiven, internen Kühlung jeder Zelle mit in den Bipolarplatten integrierten Kühlkanälen besonders hoch. Aus diesem Grund ist auch die Komplexität der Kühlsysteme mit Wärmeträgerflüssigkeit höher als bei einer internen, aktiven Luftkühlung, da die Dichtungsanforderungen wesentlich höher sind. Die entscheidenden Vorteile die zur Wahl von Wärmeträgerflüssigkeit als bevorzugtes Wärmeträgermedium geführt haben, sind die gute Verwendbarkeit der Wärme im System und die geringere parasitäre Leistungsaufnahme durch das Kühlsystem. Wie in Kapitel 8.2 bereits beschrieben, ist sowohl die Wärmekapazität als auch die Wärmeleitfähigkeit von Luft geringer als die von Wärmeträgerflüssigkeit. Dies limitiert vor allem die Wärmeeinkopplung im System. Bezogen auf die Fragestellungen 2 und 3 aus Kapitel 8.1, zeigt Abbildung 8-3 die Vorteile der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung im Vergleich mit der Luftkühlung in Bezug auf die parasitäre Leistungsaufnahme durch die Pumpe (abgeschätzt, vgl. Kapitel 5.1) bzw. die Lüfter (gemessen, vgl. Kapitel 6.2).



**Abbildung 8-3: Vergleich der parasitären Leistungsaufnahme der Luftkühlung (gemessenen Werte) und der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung (abgeschätzte Werte) anhand eines 10-zelligen Stacks mit internen Kühlung von jeder Zelle**

Anhand Abbildung 8-3 ist zu erkennen, dass bei der Luftkühlung von Stacks mit einer Leistungserzeugung von über 590 W, die parasitäre Leistungsaufnahme des Kühlsystems

mit mehr als 10 % bezogen auf die erzeugte Leistung zu hoch ist. Im Vergleich dazu beträgt die abgeschätzte Leistungsaufnahme der Pumpe des Wärmeträgerflüssigkeitskühlkreislaufes mit maximal 12 W bei einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  deutlich unter 10 % der erzeugten Stackleistung (für  $j > 100 \text{ mA cm}^{-2}$ ). Würde die Wärmeträgerflüssigkeitskühlung geregelt, ergeben sich weitere Verbesserungen bei der parasitären Leistungsaufnahme, da bei niedrigen Stromdichten der Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit geringer sein kann.

Insgesamt ist das intern mit gekapselten Kühlzellen und Wärmeträgerflüssigkeit gekühlte Konzept am vielversprechendsten, um einen Stack mit einer Leistungserzeugung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  zu temperieren. Die Vorteile gegenüber dem fast ebenso gut geeigneten externen, Heatpipe-unterstützten Kühlkonzept ist vor allem der mögliche Betrieb ohne Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit.

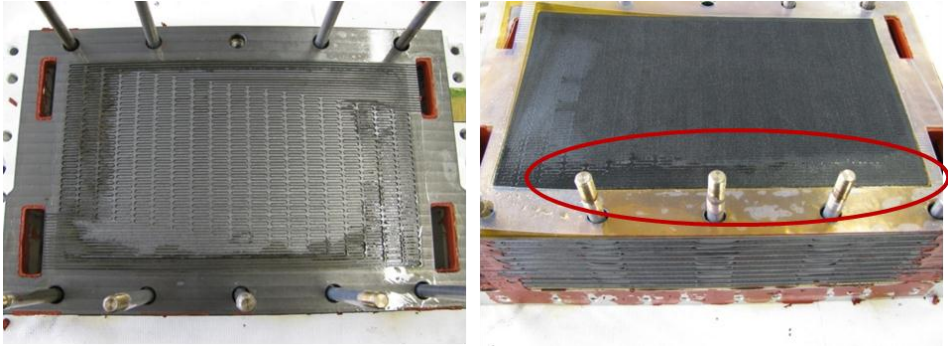
### 8.5 Wesentliche Vor- und Nachteile

Die theoretischen Untersuchungen von Wasser zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks zeigen, dass eine Kühlung mit sehr geringen Temperaturdifferenzen über der aktiven MEA-Fläche im gesamten Betriebsbereich des Stacks möglich ist. Ebenfalls kann die Wärme aufgrund der hohen Wärmetransportkapazität und der hohen Wärmeleitfähigkeit von Wasser effizient im System weiterverwendet werden. Entscheidender Nachteil ist aber der notwendige Druck im Kühlkreislauf von über 6 bar.

Die Verwendung von Luft hat den Vorteil, dass alle untersuchten Konzepte sehr einfache Systeme mit geringer Komplexität sind, allerdings aufgrund der zu geringen (passive Luftkühlung) oder zu ineffizienten Wärmeabfuhr (aktive interne Kühlung und Kathodenluftkühlung) nicht den hier definierten Anforderungen genügen. Außerdem ist zusätzlich ein Aufheizen mit Hilfe von Heizpatronen erforderlich.

Wie die Vergleiche und Bewertungen zeigen, ist Wärmeträgerflüssigkeit das bevorzugte Wärmeträgermedium bezogen auf die beschriebenen Anforderungen. Prinzipiell eignen sich alle in Kapitel 5 untersuchten Konzepte. Jedoch besteht, wie in Kapitel 8.4 beschrieben, die Gefahr einer potentiellen MEA-Schädigung. Diese ist insbesondere bei der internen aktiven Kühlung mit in der Bipolarplatte integrierten Kühlkanälen hoch. Aufgrund der unterschiedlichen Kompressibilität der eingesetzten Materialien ist eine ausreichende Dichtwirkung bei diesem Konzept nur bei hohen Anpressdrücken ( $> 60 \text{ kN}$ ) gewährleistet. Diese Anpresskraft gleichmäßig und ausreichend an jeder Dichtstelle zu gewährleisten, ist gerade bei großen aktiven Flächen ( $> 200 \text{ cm}^2$ ) und hohen Zellanzahlen ( $> 5$ ) schwierig. Ein Versagen der Dichtung kann dazu führen, dass Wärmeträgerflüssigkeit in die MEA-Bereiche eindringen und dort zu einer irreversiblen Schädigung bis hin zu einem Totalversagen des Stacks führen kann. Hinzu kommt, dass bei einem Austreten von Wärmeträgerflüssigkeit nach außen die Kühlleistung abnehmen kann, wenn die Wärmeträgerflüssigkeitsmenge zu gering ist. In Abbildung 8-4 sind exemplarisch für einen Stack mit einer aktiven Fläche von  $320 \text{ cm}^2$  die Auswirkungen eines solchen Dichtungsversagens dargestellt. Dabei ist Wärmeträgerflüssigkeit durch die Flachdichtung in die Reaktandenkanäle und die MEA gelangt. Die Wärmeträgerflüssigkeit führte zu

einem Verstopfen der porösen Gasdiffusionsschicht und einer irreversiblen Schädigung der Katalysatorschicht. In den betroffenen Bereichen ist demzufolge keine elektrochemische Reaktion zur Stromerzeugung möglich. Die Zellspannung sinkt und führt letztendlich zu einem kompletten Ausfall des Stacks.



**Abbildung 8-4: Eindringene Wärmeträgerflüssigkeit in MEA-Bereiche aufgrund von Dichtungsversagen (rot markiert)**

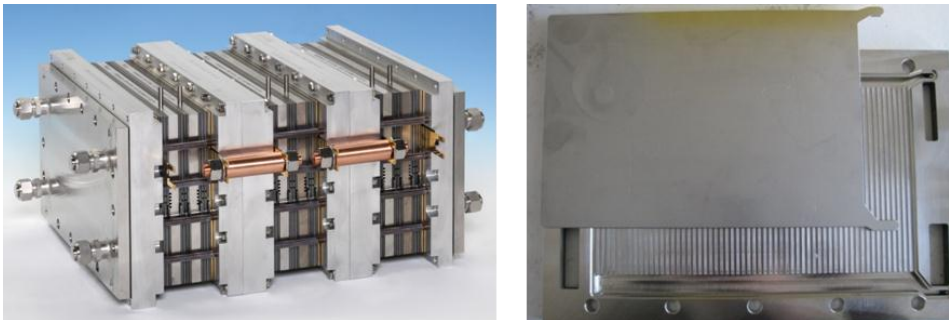
Mögliche Optionen zur Reduzierung des Dichtungsversagens wären konstruktive Änderungen am Dichtungskonzept oder der Einsatz alternativer Dichtungswerkstoffe. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, ein prinzipiell anderes Kühlkonzept zu verwenden, wie beispielsweise gekapselte Kühlzellen (vgl. Kapitel 5.2) oder eine externe Heatpipe-unterstützte Kühlung (vgl. Kapitel 5.3).

Aufgrund des Vorteils eines möglichen Stackbetriebs ohne Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit (vgl. Abschnitt 8.3) wird zur Realisierung eines Stacks mit einer Leistungserzeugung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  die interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mit gekapselten Kühlzellen für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit weitergehend untersucht.



## 9 Realisierung einer Kühlung für einen HT-PEFC-Stack der kW-Klasse

Die interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen wurde in Kapitel 8 anhand der Voruntersuchungen als potentiell am besten geeignet identifiziert. Das Kühlkonzept wird in diesem Kapitel detaillierter untersucht. Aufbauend auf den Voruntersuchungen in Kapitel 5.2, wird die Auslegung und experimentelle Untersuchung eines Kühlkonzeptes mit gekapselten Kühlzellen vorgestellt. Das Kühlsystem soll einen HT-PEFC-Stack im Reformatbetrieb mit einer Leistung von 5 kW<sub>el</sub> temperieren. Um die geforderte Leistung zu generieren, ist eine aktive Zell-Fläche von 320 cm<sup>2</sup> vorgesehen. Eine Hochskalierung von experimentell ermittelten Leistungsdaten des Stackkonzeptes aus Kapitel 5.2 hat gezeigt, dass voraussichtlich 70 Zellen benötigt werden. Der Stack soll in Modulbauweise mit 12 Zellen pro Modul ausgeführt werden<sup>3</sup>. Die Modulbauweise hat den Vorteil, dass bei einem möglichen Zellenversagen nicht der gesamte Stack deassembliert werden muss, sondern nur das betreffende Modul. Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus ist in [65] zu finden. Im Gegensatz zu dem Stackkonzept aus Kapitel 5.1 sollen die Kühlzellen jedoch nicht in die Bipolarplatten integriert werden, sondern aus Edelstahl als in sich geschlossenes System gefertigt werden. Wie in Abbildung 9-1 zu erkennen ist, wird die Kühlzelle zweiteilig ausgelegt und verlötet. Die Kühlmedienverteilung auf die Kühlzellen erfolgt außerhalb des Stacks.



**Abbildung 9-1: Stackaufbau in Modulbauweise (links) und gekapselte Kühlzellen aus Edelstahl (rechts)**

Eine Überprüfung der Dichtigkeit ist vor der Stackassemblierung möglich, da die Kühlzellendichtung nicht mehr abhängig von der Verspannung des Stacks ist (vgl. Kapitel 5.1.1.1). In den Endplatten eines Stackmoduls werden ebenfalls Kühlkanäle integriert. Die Modulendplatten fungieren faktisch also ebenfalls als Kühlzelle.

Wie die Vorauslegung in Kapitel 5.2 gezeigt hat, ist eine Kühlung von nur jeder dritten Zelle möglich. Allerdings ändern sich aufgrund des Einsatzes der gekapselten Kühlzellen und der größeren aktiven Zell-Fläche die Randbedingungen zur Berechnung der

---

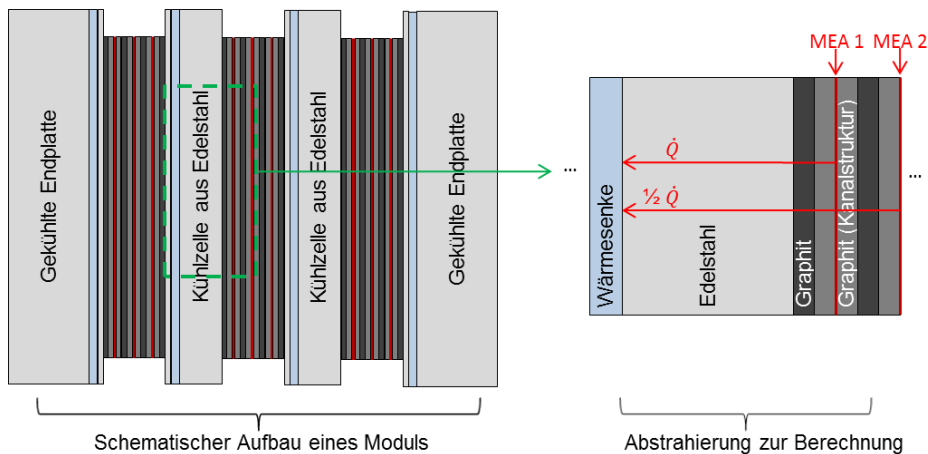
<sup>3</sup> 5 Module mit 12 Zellen, 1 Modul mit 10 Zellen

Temperaturdifferenzen von Zelle zu Zelle (vgl. Kapitel 5.2.1). Im Folgenden sollen daher die zu erwartenden Temperaturdifferenzen im Stack berechnet werden.

Teile dieses Kapitels sind vorab im *International Journal of Hydrogen Energy* veröffentlicht worden [116].

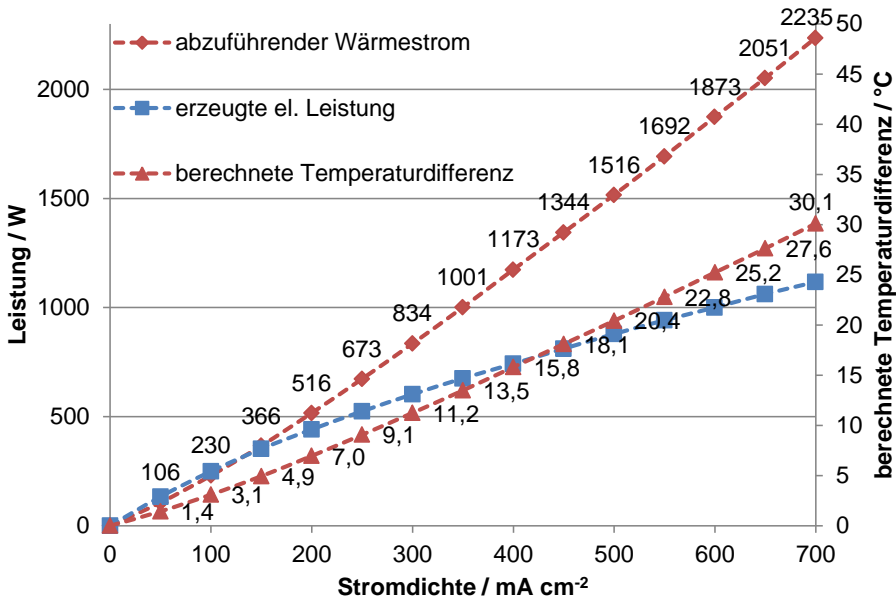
## 9.1 Auslegung der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung mit gekapselten Kühlzellen

Die Auslegung der Kühlung basiert auf den in Kapitel 5.2.1 beschriebenen Grundlagen. Aufgrund der Modulbauweise und dem in Abbildung 9-1 gezeigten Aufbau der gekapselten Kühlzellen ist es mit dem analytischen Ansatz nur möglich, ein sich in der Modulmitte befindliches Zellpaket näherungsweise hinsichtlich der Temperaturverteilung zu berechnen. Der Ansatz der Modellbildung für einen nach jeder dritten Zelle gekühlten Stack ist in Abbildung 9-2 dargestellt. Die weitere Vorgehensweise entspricht dem in Kapitel 5.2.1 detailliert beschriebenen Verfahren



**Abbildung 9-2: Abstrahierung zur Berechnung der Temperaturdifferenz**

Die Berechnung der Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle erfolgt analog zu der Vorgehensweise aus Kapitel 5.2.1. Details der Berechnungen sind im Anhang zu finden. Für einen nach jeder dritten Zelle gekühlten Stack mit 320 cm<sup>2</sup> aktiver MEA-Fläche ergibt sich aus Gleichung (5-3) die in Abbildung 9-3 gezeigte Temperaturdifferenz im Vergleich mit der mit Hilfe der Energiebilanz berechneten erzeugten Wärmeleistung.



**Abbildung 9-3: Mit Hilfe der Energiebilanz berechneter abzuführender Wärmestrom eines Moduls und berechnete Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle: Reformbetrieb,  $A_{\text{aktiv}}=320 \text{ cm}^2$ , vollständige thermische Isolation, 12 Zellen**

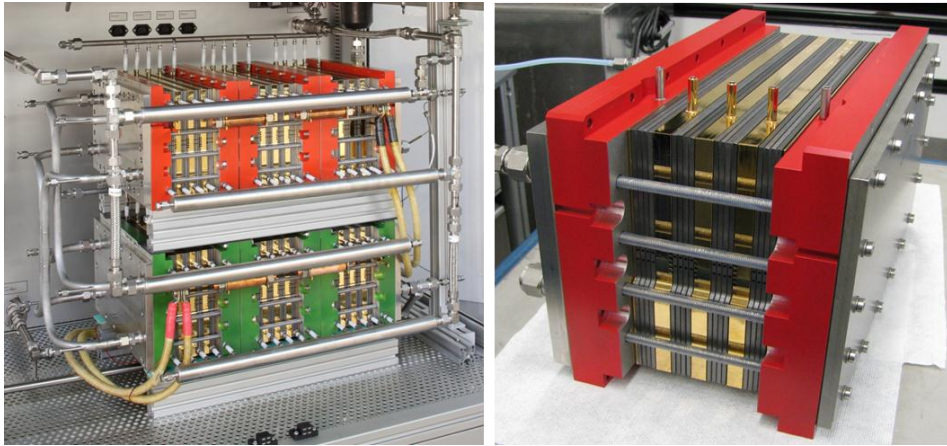
Aus Abbildung 9-3 geht hervor, dass ein HT-PEFC-Stackmodul mit 12 Zellen und einer aktiven MEA-Fläche von  $320 \text{ cm}^2$  im Reformbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  ausreichend gekühlt wird, wenn jede dritte Zelle temperiert wird. Bei dieser Stromdichte beträgt die maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle  $18,1 \text{ K}$ . Wie in der Vorauslegung (vgl. Abbildung 5-16) gezeigt wurde, beträgt das Temperaturniveau im Stack für diesen Betriebspunkt  $160 \text{ °C}$  bei einer Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit von  $140 \text{ °C}$ . Damit würde die maximale Temperatur im Stack bei einer Temperaturdifferenz von  $18,1 \text{ K}$  die Betriebstemperaturgrenze nicht überschreiten. Bei höheren Stromdichten würden bei konstanter Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur lokal Temperaturen über  $180 \text{ °C}$  im Stack auftreten. Ein Betrieb bei Stromdichten über  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  ließe sich durch ein Absenken der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit realisieren. Im Reformbetrieb liegt der Stackwirkungsgrad der Stromerzeugung bei Stromdichten über  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  deutlich unter  $50 \%$ , so dass ein stationärer Betrieb nur unter Umständen energetisch sinnvoll wird.

Ein Betrieb des HT-PEFC-Stacks mit einer Kühlung von jeder dritten Zelle kann erfolgen, solange die abzuführende Wärme durch die Kühlzellen vollständig abgeführt werden kann. Eine Auslegung hinsichtlich des Wärmeübergangs muss also durchgeführt werden. Die im Anhang zu findende Berechnung zeigt, dass die Kühlung nicht durch den Wärmeübergang von Kanalwand auf das Wärmeträgermedium limitiert ist.



## 9.2 Experimenteller Versuchsaufbau

Basierend auf der in Kapitel 9.1 vorgestellten Auslegung der gekapselten Kühlzellen wird ein HT-PEFC-Stack bestehend aus 6 Modulen mit insgesamt 70 elektrochemischen Zellen aufgebaut, um im Reformatbetrieb eine Leistung von 5 kW<sub>el</sub> zu erzeugen (vgl. Abbildung 9-4, links). Zur Charakterisierung der Kühleigenschaften wurde ein Modul bestehend aus 12 Zellen, 3 Kühlzellen und gekühlten Endplatten mit einer aktiven Fläche von 320 cm<sup>2</sup> untersucht (vgl. Abbildung 9-4, rechts).



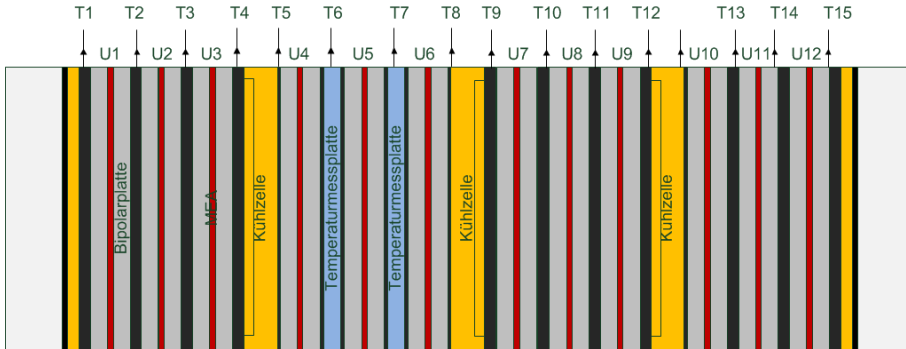
**Abbildung 9-4: Experimenteller Versuchsaufbau des Stacks (links) und eines Moduls (rechts) mit gekapselten Kühlzellen**

Der Betrieb erfolgt mit synthetischem Reformat und Luft bei einem stöchiometrischen Verhältnis von jeweils 2. Die variablen Parameter der Wärmeträgerflüssigkeitszufuhr sind auf eine Eintrittstemperatur von 160 °C und einen Volumenstrom von 6 L min<sup>-1</sup> festgelegt. Eine Übersicht der experimentellen Betriebsbedingungen ist in Tabelle 9-1 zu finden.

**Tabelle 9-1: Übersicht der experimentellen Betriebsbedingungen**

Anodengas	Synthetisches Reformat (42% H <sub>2</sub> , 57% N <sub>2</sub> , 1% CO)
Kathodengas	Luft
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$
T <sub>Gas,ein</sub>	160 °C
T <sub>WT,ein</sub>	160 °C
Volumenstrom des Kühlmittels	6 L min <sup>-1</sup>
A <sub>aktiv</sub>	320 cm <sup>2</sup> je Zelle
MEA	BASF Celtec® P1000
Modul	12 Zellen
Kühlung	3 Kühlzellen + gekühlte Endplatten
Wärmeträgerflüssigkeit	Fragoltherm S-15-A

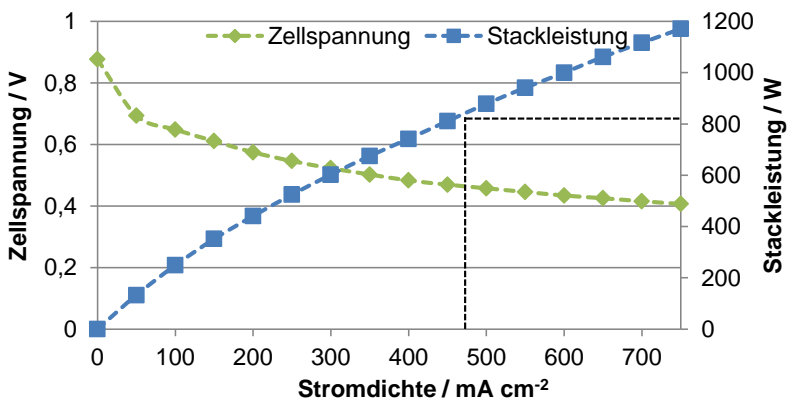
Zur Bestimmung der Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle wurden 15 Thermoelemente (Typ K) an den in Abbildung 9-5 gezeigten Stellen im Stack positioniert (T1- T15). Die Temperaturmessung erfolgt auf Höhe des geometrischen Zentrums der MEA, jedoch nicht direkt auf der MEA (vgl. Kapitel 4.2). Zusätzlich wird die Zellspannung über die MEA gemessen (U1 –U12).



**Abbildung 9-5: Positionierung der Thermoelemente**

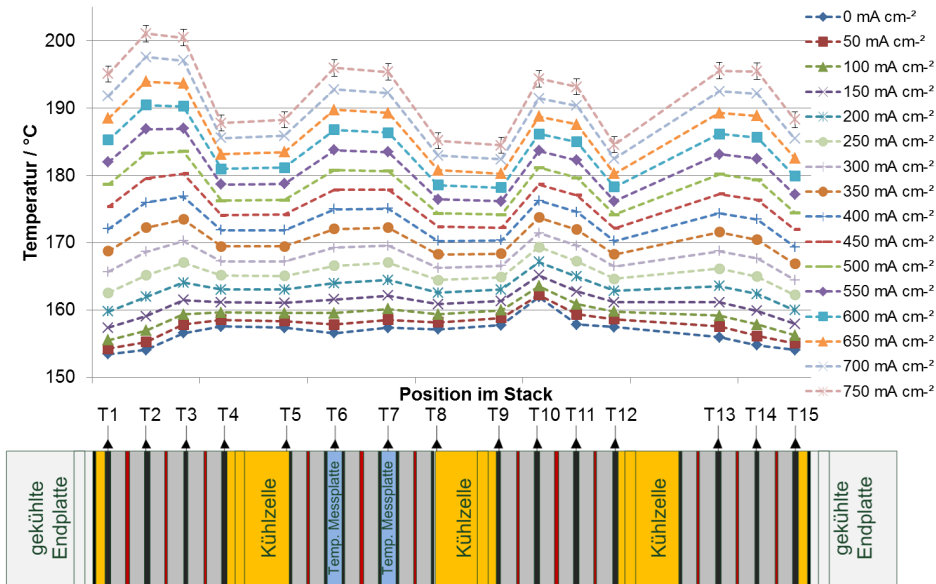
Dieser Stackaufbau wurde insgesamt 420 h betrieben wobei die MEAs aus einem bereits betriebenen Stack wiederverwendet wurden und insgesamt etwa 750 Betriebsstunden aufwiesen. Während des gesamten Betriebes des Stacks sind keinerlei Leckagen und Kühlmittelverluste aufgetreten. Zur Charakterisierung der Kühlleistung unter verschiedenen Betriebsbedingungen wurden Strom/Spannungs-Kennlinien nach dem in Kapitel 4.2 beschriebenen Verfahren gemessen.

Ziel der Untersuchungen ist es, ein Stack in Modulbauweise mit einer Leistung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  zu kühlen. Dahingehend wird ein Modul dieses Stacks untersucht. Die erzeugte elektrische Leistung und die dazugehörige Strom/Spannungs-Kennlinie sind in Abbildung 9-6 dargestellt.



**Abbildung 9-6: Leistung und Strom/Spannungs-Kennlinie für ein Modul bei  $T_{\text{WT,ein}}=160 \text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $\dot{V}_{\text{WT,ein}}=6 \text{ L min}^{-1}$**

Die schwarz gestrichelte Linie verdeutlicht, dass bei einer Stromdichte von  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  eine Stackleistung von  $835 \text{ W}_{\text{el}}$  erzeugt wird. Hochskaliert auf 6 Module reicht dies aus, um eine Leistung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  zu erzeugen. In Kapitel 9.1 wurde gezeigt, dass ein sicherer Betrieb bis zu einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  hinsichtlich der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle möglich ist. Die dazugehörigen experimentellen Temperaturmessungen über den gesamten Stromdichtebereich sind in Abbildung 9-7 dargestellt.

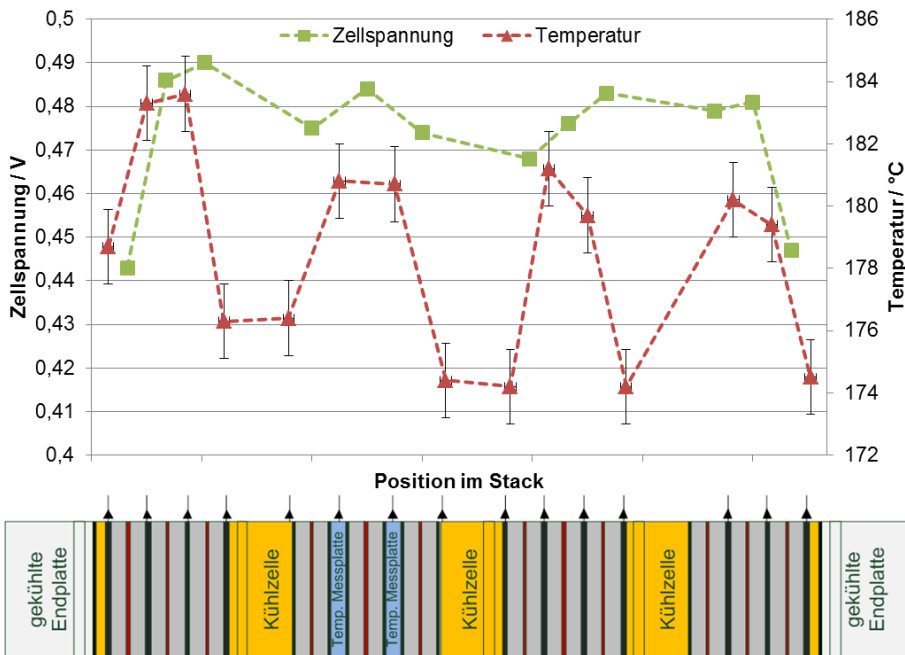


**Abbildung 9-7: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei  $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$**

Es zeigt sich, dass die maximale Temperaturdifferenz zwischen kältester und wärmster Stelle im Modul mit steigender Stromdichte steigt. Wie in Kapitel 9.1 vorhergesagt, sind die höchsten Temperaturen in der mittleren Zelle zwischen den Kühlzellen zu finden. Die tiefsten Temperaturen treten wie erwartet über die Kühlzellen auf. Bei sehr niedrigen Stromdichten ist der Temperaturverlauf sehr homogen mit Temperaturdifferenzen unter 5 K. Der bei  $0 \text{ mA cm}^{-2}$  im Thermoelement T10 auftretende Peak, ist messtechnisch bedingt. Eine lange Verweildauer bei offener Zellspannung sollte aufgrund von hohen MEA-Alterungsraten bei der Messung der Strom/Spannungs-Kennlinien vermieden werden (vgl. Kapitel 4.2). Dadurch kann es dazu kommen, dass die Temperatur noch keinen stationären Wert erreicht hat. Bei allen weiteren Stromdichten wurde deshalb 5 min gewartet, bevor der Temperaturmesswert geloggt wurde. In Abbildung 9-7 ist außerdem zu erkennen, dass die maximale Temperaturdifferenz 16,6 K bei einer Stromdichte von  $750 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt. Dies wäre akzeptabel, allerdings liegen die absoluten Temperaturen im Maximum über  $200 \text{ °C}$ . Ein dauerhaft sicherer Betrieb des Stacks kann bei dieser Stromdichte nicht gewährleistet werden. Um eine Stackleistung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  zu erreichen, ist ein Betrieb bei solch hohen Stromdichten ohnehin nicht

notwendig. Bei einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  liegt die Maximaltemperatur unterhalb der kritischen Grenze von  $180^\circ\text{C}$  und die Temperaturdifferenz beträgt in diesem Betriebspunkt  $8,3 \text{ K}$ . Damit liegen alle Temperaturdifferenzen unter der in Kapitel 9.1 vorgestellten Abschätzung zur Auslegung. Falls ein dauerhafter Stackbetrieb bei höheren Stromdichten erforderlich ist, kann durch einen erhöhten Volumenstrom des Kühlmediums oder einer Absenkung der Kühlmiteleintrittstemperatur ein sicherer Betrieb bei Temperaturen unter  $180^\circ\text{C}$  ermöglicht werden. Insgesamt ist festzustellen, dass ein dauerhafter Betrieb im erforderlichen Betriebsbereich bis  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  hinsichtlich der Temperaturverteilung und Wärmeabfuhr durch eine Kühlung von jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen möglich ist. Bei einem vorwiegend instationären Betrieb mit stark alternierender Leistungserzeugung kann ein Betrieb bis zu einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  erfolgen, da das Temperaturmaximum mit  $183,6^\circ\text{C}$  nur geringfügig über der Grenze von  $180^\circ\text{C}$  liegt und nicht kontinuierlich auftreten würde.

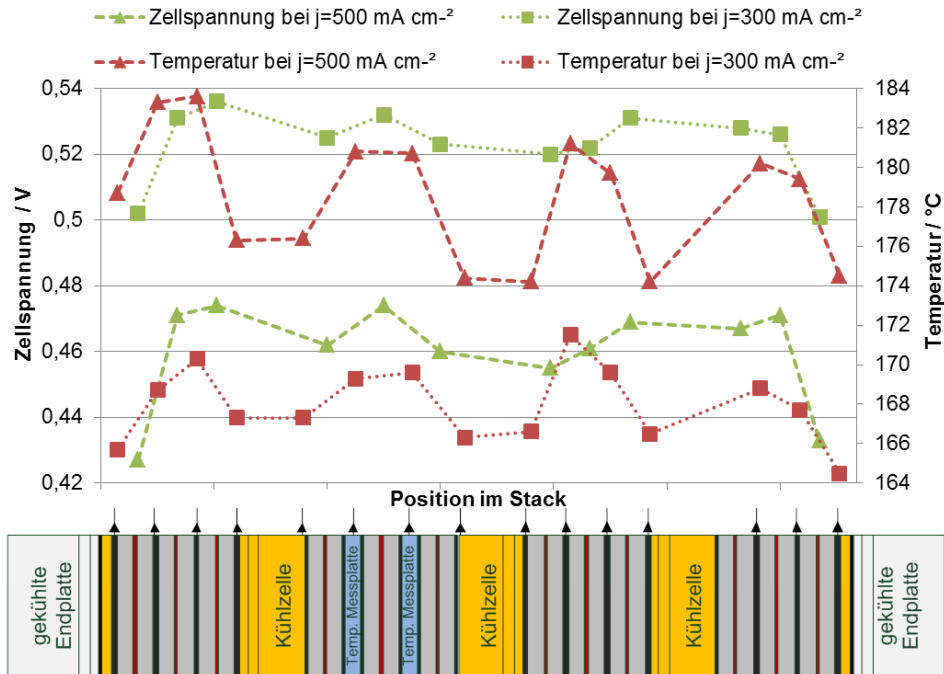
Wie bereits erläutert beeinflusst die Temperaturverteilung die Spannungsverteilung. Um einen negativen Einfluss des Kühlkonzeptes auf die Leistungserzeugung auszuschließen, muss die Zellspannungsverteilung überprüft werden. Abbildung 9-8 zeigt die Zellspannungsverteilung und die dazugehörige Temperaturverteilung bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .



**Abbildung 9-8: Vergleich zwischen Zellspannung und Temperaturverteilung bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$**

Abbildung 9-8 zeigt, dass die Zellspannungen und Temperaturen ein ähnliches Profil aufweisen. Bei höheren Temperaturen ist die Zellspannung ebenfalls hoch. Zusätzlich

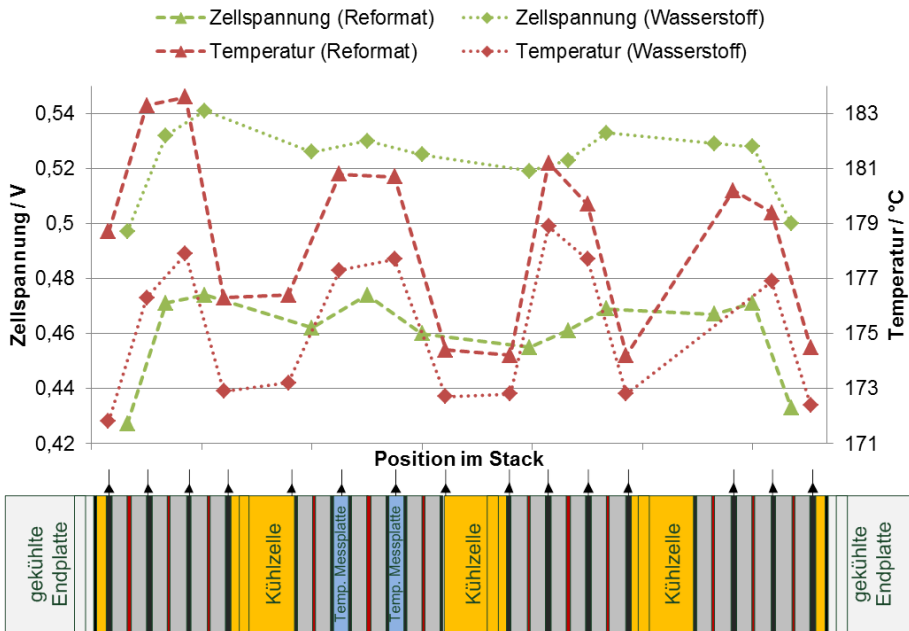
kann ein Zellspannungsabfall bei der ersten und letzten Zelle des Moduls festgestellt werden. In diesen Zellen entspricht die gemessene Spannung allerdings nicht der realen Zellspannung. Messtechnisch bedingt wird der Übergangswiderstand auf die Stromabnehmer mitgemessen. Insgesamt ist jedoch die maximale Zellspannungsdifferenz mit 0,047 V gering und unkritisch. Um zu überprüfen, ob diese Spannungsverteilung auch bei niedrigeren Stromdichten auftritt, ist in Abbildung 9-9 ein Vergleich zwischen den Betriebspunkten 300 mA cm<sup>-2</sup> und 500 mA cm<sup>-2</sup> dargestellt.



**Abbildung 9-9: Vergleich zwischen den Betriebspunkten bei 300 und 500 mA cm<sup>-2</sup>**

Anhand Abbildung 9-9 ist zu erkennen, dass die Zellspannungsverläufe bei den Stromdichten 300 mA cm<sup>-2</sup> und 500 mA cm<sup>-2</sup> nahezu gleich verlaufen. Beide Verläufe folgen der jeweiligen Temperaturverteilung. Das Temperaturniveau (178,5 °C) liegt bei einer Stromdichte von 500 mA cm<sup>-2</sup> oberhalb des Temperaturniveaus (168,0 °C) bei einer Stromdichte von 300 mA cm<sup>-2</sup>. Da die Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit konstant bleiben und der abzuführende Wärmestrom steigt (vgl. Abbildung 9-3) muss das Temperaturniveau im Stack steigen. Die durchschnittliche Zellspannung von 0,52 V bei einer Stromdichte von 300 mA cm<sup>-2</sup> liegt 0,06 V über der durchschnittlichen Zellspannung bei 500 mA cm<sup>-2</sup> (0,46 V). Daher ist bei niedrigeren Stromdichten das Verhältnis von erzeugter elektrischer zu thermischer Energie größer. Daraus folgt auch, dass das Temperaturniveau bei einer Stromdichte von 300 mA cm<sup>-2</sup> im Mittel 10,5 K unterhalb des durchschnittlichen Temperaturniveaus bei einer Stromdichte von 500 mA cm<sup>-2</sup> liegt.

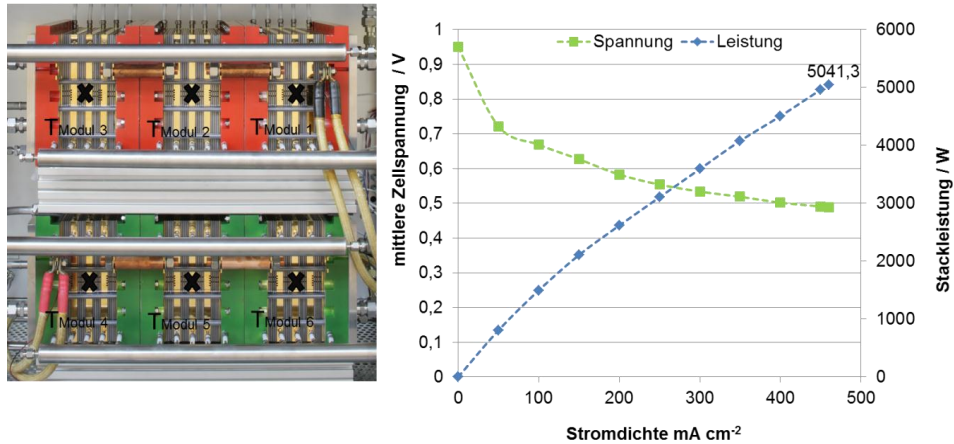
Ähnliches kann auch bei einem Vergleich zwischen Reformatbetrieb und Wasserstoffbetrieb beobachtet werden. Abbildung 9-10 zeigt einen solchen Vergleich bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  und einer Stöchiometrie von  $\lambda_{\text{Ref/Luft}}=2/2$  bzw.  $\lambda_{\text{H}_2/\text{Luft}}=2/2$ .



**Abbildung 9-10: Vergleich von Reformat- und Wasserstoffbetrieb bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$**

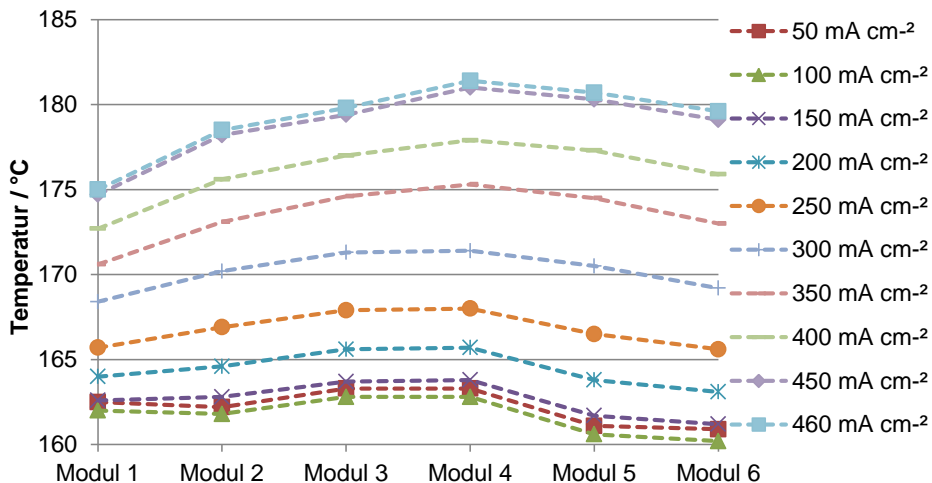
Bei gleicher Stromdichte liegt das Zellspannungsniveau für den Wasserstoffbetrieb mit durchschnittlich 0,52 V um 0,06 V über dem Zellspannungsniveau des Reformatbetriebs (0,46 V). Anhand der Energiebilanz ergibt sich, dass der abzuführende Wärmestrom des Reformatbetriebs um 129,6 W höher ist als beim Wasserstoffbetrieb. Daher liegt das Temperaturniveau des Wasserstoffbetriebs unterhalb dem des Reformatbetriebs, da die Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit gleich sind. Eine ausreichende Kühlung ist also bis zu einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  ( $\dot{Q}_{ab, \text{Ref}}=1516 \text{ W}$ ) gewährleistet. Im Wasserstoffbetrieb wird aufgrund des höheren Spannungsniveaus häufig ein Betriebspunkt bei höheren Stromdichten gewählt. Eine Abschätzung mit Hilfe der Energiebilanz zeigt, dass eine ausreichende Kühlung im Wasserstoffbetrieb nur bis zu Stromdichten unterhalb von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  ( $\dot{Q}_{ab, \text{H}_2}=1549 \text{ W}$ ) gewährleistet ist. Das hier vorgestellte Kühlkonzept ist also spezifisch für den Reformatbetrieb ausgelegt.

Abschließend muss noch überprüft werden, ob sich das Modulverhalten auch im gesamten Stackaufbau widerspiegelt. Aus diesem Grund wird die Temperatur in jedem Modul in etwa im volumetrischen Zentrum gemessen. Abbildung 9-11 zeigt die Messstellen und die Leistungskennwerte des Gesamtaufbaues.



**Abbildung 9-11: Platzierung der Thermoelemente (links) und erreichte Stackleistung (rechts) gemessen im Reformatbetrieb,  $T_{WT,ein}=160\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $\dot{V}_{WT,ein}=18\text{ L min}^{-1}$ , 70 Zellen,  $\lambda_{Ref/Luft}=2/2$**

Anhand der Strom/Spannungs-Kennlinie ist zu erkennen, dass eine Gesamtleistung von über  $5\text{ kW}_{el}$  bei einer Stromdichte von  $460\text{ mA cm}^{-2}$  und einem Betrieb mit synthetischem Reformat erzielt wurde. Aufgrund der Teststandrestriktionen konnte nur ein Gesamtvolumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit von maximal  $18\text{ L min}^{-1}$  zur Kühlung verwendet werden. Das bedeutet eine Halbierung des in der Auslegung und Untersuchung eines Moduls verwendeten Volumenstroms und einer damit verbundenen geringeren Kühlleistung. Alle weiteren Parameter bleiben aber zu den in Kapitel 9.2 beschriebenen Parametern identisch. Die ermittelten Temperaturen sind in Abbildung 9-12 dargestellt.



**Abbildung 9-12: Temperaturmessungen in den Modulen des Stacks**

Aufgrund der Positionierung der Thermoelemente (vgl. Abbildung 9-11) wird die Messung in Bereichen mit niedriger Temperatur durchgeführt (vgl. Position T8 in Abbildung 9-7). Im Vergleich mit den Messungen aus Abbildung 9-7 wird die Maximaltemperatur um 7,9 K (bei  $j=450 \text{ mA cm}^{-2}$ ) über der hier gemessenen Temperatur liegen.

Anhand von Abbildung 9-12 ist zu erkennen, dass die Temperaturdifferenzen zwischen den einzelnen Modulen des Gesamtstacks hinreichend klein sind und im Maximum 6,4 K bei einer Stromdichte von  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt. Bei niedrigen Stromdichten sinkt die Temperaturdifferenz ebenfalls. Das Temperaturniveau bei  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  liegt geringfügig oberhalb des Temperaturniveaus bei  $100 \text{ mA cm}^{-2}$ , da die Haltezeit bis zum Einstellen einer stationären Temperatur zu gering war.

### 9.3 Beurteilung des Kühlkonzeptes

Insgesamt konnte mit Hilfe der experimentellen Untersuchungen festgestellt werden, dass ein Kühlkonzept mit gekapselten Kühlzellen, bei dem jede dritte Zelle gekühlt wird, einen Stack bis zu einer Stromdichte von  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  ausreichend temperieren kann. Durch eine Variation der Randbedingungen wie Kühlmiteleintrittstemperatur oder Kühlmittelvolumenstrom kann auch bei höheren Stromdichten der Stack ausreichend gekühlt werden. Im Vergleich zum Kühlkonzept aus Kapitel 5.1 konnte eine deutlich erhöhte Sicherheit gegenüber Leckagen erzielt werden. Das Kühlkonzept ist geeignet, um HT-PEFC-Stacks mit einer Leistung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  im Reformatbetrieb zu temperieren. Auch höhere Leistungen können aufgrund der Modulbauweise durch Hinzunahme weiterer Module erreicht werden.

Nachteil des Kühlkonzeptes ist das sehr hohe Gewicht ( $4,5 \text{ kg}$  je Kühlzelle) und Volumen ( $0,0084 \text{ m}^3$  je Kühlzelle) der Kühlzellen. Weitergehende Arbeiten im Bereich der Stackkonstruktion können aber bei gleichbleibender Kühlleistung zu einer deutlichen Reduzierung des Gewichts und des Volumens führen.





## 10 Diskussion der untersuchten Kühlkonzepte

In diesem Kapitel werden zusammenfassend die in dieser Arbeit untersuchten Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks diskutiert. Aufbauend auf dem Vergleich und der Bewertung der Voruntersuchungen (Kapitel 8), liegt der Fokus in diesem Kapitel vor allem auf den vier Kühlkonzepten, die prinzipiell als geeignet erscheinen und die experimentell untersucht wurden. Nicht weiter diskutiert werden die Wasserkühlung sowie die externe passive Kühlung und die Kathodenluftkühlung, da sie sich als nicht geeignet herausgestellt haben (vgl. Kapitel 8).

### 10.1 Wärmeträgermedium

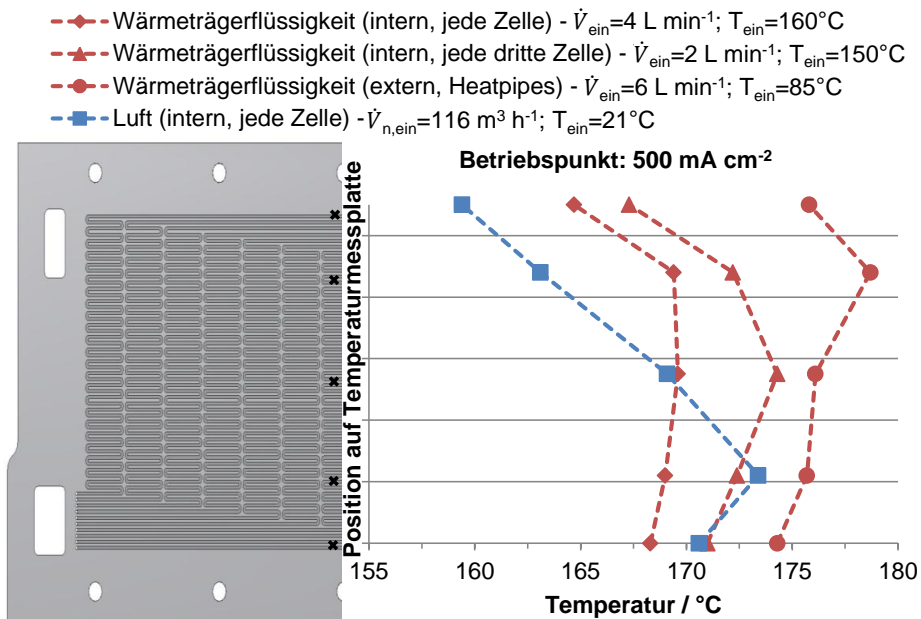
Die diskutierten Kühlkonzepte verwenden Luft oder Wärmeträgerflüssigkeit (Fragoltherm-S-15-A) als Wärmeträgermedium. In Kapitel 8 wurden bereits die physikalischen Stoffeigenschaften Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität gegenübergestellt (vgl. Tabelle 8-1). Dazu wurde der Volumenstrom bestimmt, der zur Abfuhr von 1 kW thermischer Leistung notwendig ist, unter der Voraussetzung, dass die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Wärmeträgermediestrom auf 10 K festgelegt wird. Dabei wurde deutlich, dass der Luftvolumenstrom um den Faktor 4800 höher ist als der von Wärmeträgerflüssigkeit. Ausschlaggebend ist neben der halb so hohen Wärmekapazität vor allem der Unterschied der Dichte von Luft ( $0,8 \text{ kg m}^{-3}$ ) und Wärmeträgerflüssigkeit ( $901 \text{ kg m}^{-3}$ ).

Bei einem Vergleich der beiden Kühlkonzepte mit internen in die Bipolarplatten integrierten Kühlflowfields (Wärmeträgerflüssigkeit und Luft) zeigt sich, dass der Unterschied im Volumenstrom der Kühlmedien niedriger ist. Bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt die mittlere Betriebstemperatur mit beiden Konzepten  $170 \text{ °C}$  und der abzuführende Wärmestrom  $778 \text{ W}$ . Dafür muss der Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit  $4 \text{ L min}^{-1}$  bei einer Eintrittstemperatur von  $160 \text{ °C}$  betragen, während bei Luft ein Volumenstrom von  $1930 \text{ L min}^{-1}$  bei einer Eintrittstemperatur von  $21 \text{ °C}$  notwendig ist. Damit ist der Volumenstrom der Luft rund 480-mal höher als der der Wärmeträgerflüssigkeit, aber etwa eine Größenordnung kleiner als bei der vorher gezeigten Abschätzung. Der Grund dafür ist die deutlich höhere Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Luftvolumenstrom. Trotzdem ist die Betriebstemperatur bei beiden Kühlkonzepten in diesem Betriebspunkt mit  $170 \text{ °C}$  gleich (vgl. Abbildung 5-8 und Abbildung 6-18). Dies ist möglich, da der Wärmeübergangskoeffizient bei der Luft ebenfalls geringer ist als der der verwendeten Wärmeträgerflüssigkeit. Da die Geometrie der Kühlkanalstruktur bei beiden Kühlkonzepten identisch ist, ergeben sich lediglich Unterschiede in der Wärmeträgermedienzufuhr und -abfuhr. Aufgrund der identischen Kanalstruktur ist der mittlere Wärmeübergangskoeffizient von der Wärmeleitfähigkeit ( $\lambda_{\text{Luft}}=0,036 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  und  $\lambda_{\text{WT}}=0,158 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) und der Nusselt-Zahl abhängig (vgl. Gleichung (3-48)). Bei konstanter Wärmeabfuhr erhöht sich nach Gleichung (3-21) die Temperaturdifferenz zwischen Kanalwand und mittlerer Wärmeträgermedientemperatur, wenn der Wärmeübergangskoeffizient kleiner ist. Dies bedeutet, dass bei der Verwendung von Wärmeträgermedien mit hoher Wärmeleitfähigkeit und damit verbundenen

hohen Wärmeübergangskoeffizienten, die Temperaturdifferenz zwischen Kanalwand und dem Wärmeträgermedium gering ist. Daher ist eine hohe Eintrittstemperatur ( $> 150\text{ °C}$ ) für die hier untersuchten flüssigen Wärmeträgermedien notwendig, damit die MEA-Temperaturen im optimalen Betriebstemperaturbereich liegen. Somit ist eine Vorwärmung der Wärmeträgermedien zwingend erforderlich. Eine Ausnahme hiervon ist die externe Heatpipe-unterstützte Kühlung, da dort zuerst ein Wärmetransport durch die Heatpipes zwischen wärmeerzeugenden Stackbereichen und Wärmeträgerflüssigkeit stattfindet und der Wärmeübergang vor allem durch die wärmeübertragende Fläche der Heatpipes im Wärmeträgerbad begrenzt ist.

## 10.2 Temperaturverteilung in der Zell-Ebene

Auch bei der Betrachtung der Temperaturverteilung in der Zell-Ebene ist der Einfluss der unterschiedlichen physikalischen Eigenschaften der Wärmeträgermedien zu erkennen. Hinzu kommt noch der Einfluss des Kühlsystems, wie in Abbildung 10-1 dargestellt ist. Alle experimentell ermittelten Temperaturverteilungen wurden mit Stacks durchgeführt, die eine aktive MEA-Fläche von  $200\text{ cm}^2$  aufweisen. Die Stacks bestehen aus 10 Zellen. Ausnahme bildet der intern nach jeder dritten Zelle gekühlte Stack, der aus 9 Zellen aufgebaut ist.



**Abbildung 10-1: Einfluss des Wärmeträgermediums und des Kühlsystems auf die Temperaturverteilung in der MEA-Ebene bei einer Stromdichte von  $500\text{ mA cm}^{-2}$**

Wie in Abbildung 10-1 zu erkennen, ist die maximale Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche mit 14 K bei der Luftkühlung am höchsten. Bei der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder (4,9 K) und jeder dritten Zelle (7 K) sowie der

Heatpipe-unterstützten externen Kühlung (4,4 K) sind die Temperaturdifferenzen deutlich niedriger. Dies ist auf die bereits in Abschnitt 10.1 diskutierten Unterschiede der spezifischen Wärmekapazitäten der Wärmeträgermedien zurückzuführen. Gleichung (3-20) beschreibt den durch ein strömendes Medium abgeführten Wärmestrom. Daraus geht hervor, dass bei gleichem abzuführenden Wärmestrom und gleichem Massenstrom die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Wärmeträgermediestrom höher sein muss, wenn die Wärmekapazität geringer ist. Dies gilt nicht für die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung. Bei diesem Kühlkonzept erfolgt die Wärmeabfuhr zuerst durch die Heatpipes, deren Wärmeleitfähigkeit um den Faktor 100 bis 1000 höher ist als die der eingesetzten Stackmaterialien und der Wärmeträgermedien (vgl. Kapitel 3.5). Dies erklärt auch den Verlauf der Temperaturverteilung mit einem Maximum im oberen Bereich. Der Wärmetransport verläuft von unten nach oben, im Gegensatz zu den intern durchströmten Kühlvarianten. Das Temperaturmaximum befindet sich jedoch nicht an der obersten Messposition, da der Stack nicht ideal thermisch isoliert ist. Dieser Einfluss ist auch im unteren Bereich der von oben nach unten durchströmten Stacks zu erkennen. Besonders deutlich ist dies beim luftgekühlten Stack ausgeprägt, da dieser in diesem Bereich keine thermische Isolierung aufgrund der benötigten freien Ausströmung aufweist.

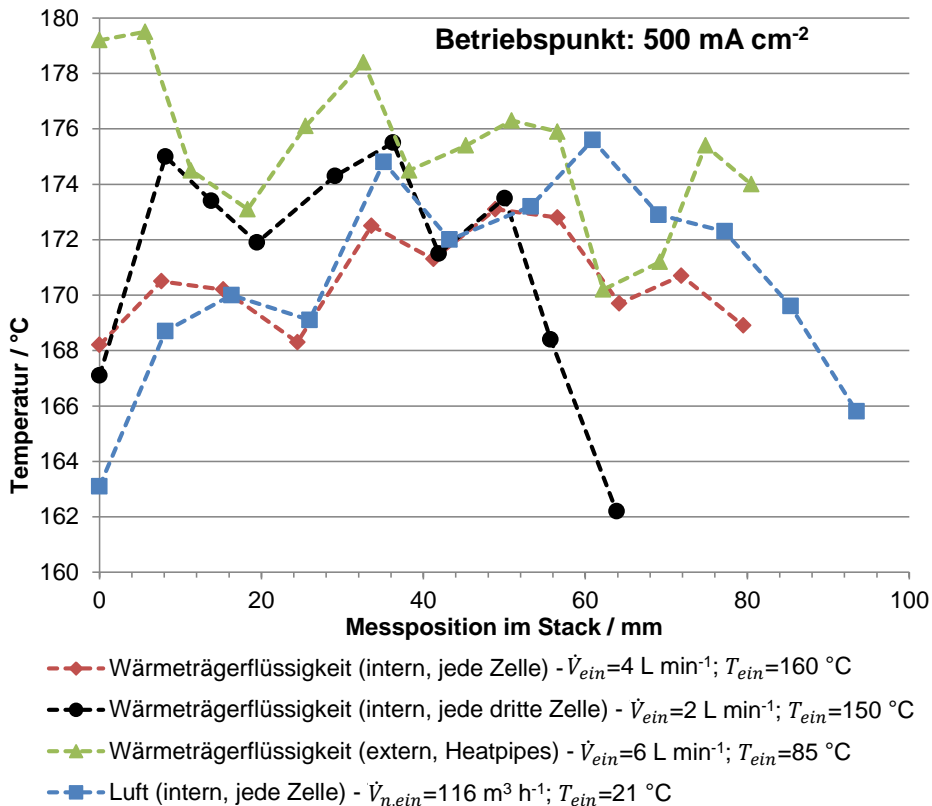
Des Weiteren ist in Abbildung 10-1 zu sehen, dass die Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche bei Kühlung jeder dritten Zelle mit 7 K höher ist als bei dem an jeder Zelle gekühlten Stack (4,9 K). Grund dafür ist, dass sich der abzuführende Wärmestrom pro Kühlzelle von 78 auf 175 W erhöht. Daraus folgt, dass sich die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretender Wärmeträgerflüssigkeit erhöhen muss, wenn der Massenstrom konstant bleibt. Theoretisch könnte durch eine Erhöhung des Volumenstroms von 0,46 auf 1,04 L min<sup>-1</sup> (pro Kühlzelle) mehr Wärme bei gleichbleibender Temperaturdifferenz (4,9 K) abgeführt werden. Eine Steigerung des Volumenstroms und damit des abgeführten Wärmestroms ist allerdings durch den Wärmeübergang von der Kanalwand auf die Wärmeträgerflüssigkeit auf 0,7 L min<sup>-1</sup> limitiert (vgl. Tabelle A 2). Bei gleichbleibender Temperaturdifferenz von 4,9 K und gleicher Wärmeträgereintrittstemperatur muss sich die Temperaturdifferenz zur Kanalwand und damit die MEA-Temperatur erhöhen, wenn ein größerer Wärmestrom (175 W) übertragen werden soll. Da eine Erhöhung der MEA-Temperatur nur bis maximal 180 °C möglich ist, bleibt nur die Eintrittstemperatur zu verringern, damit die optimale Betriebstemperatur beibehalten wird. Aus diesem Grund wurde auch die Eintrittstemperatur bei einer Stromdichte von 500 mA cm<sup>-2</sup> für die Kühlung jeder dritten Zelle im Vergleich zur Kühlung jeder Zelle von 160 auf 150 °C verringert.

Insgesamt ist festzustellen, dass bei den internen Kühlkonzepten die durchströmte Länge (hier die Höhe der aktiven Fläche) durch die Wahl des Wärmeträgermediums beschränkt wird. Aufgrund des limitierten Wärmeübergangs von Kanalwand auf das Wärmeträgermedium und der begrenzten Wärmeleitfähigkeit, muss in Abhängigkeit von der zu tolerierenden (vgl. Kapitel 2.1) Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche die Größe der aktiven MEA-Fläche begrenzt werden. Zwar besteht die Möglichkeit, bei einer parallelen Anordnung der Kühlkanäle die Breite der aktiven Fläche zu vergrößern, allerdings ist dies durch die notwendige Gleichverteilung der Strömung auf die einzelnen Kanäle limitiert. Falls größere aktive MEA-Flächen erforderlich sind, kann durch den

Einsatz hochwärmeleitfähiger Materialien eine Temperaturhomogenisierung erreicht werden. Besonders Heatpipes sind hierfür optimal geeignet, da die Wärmeleitfähigkeit wegen der Ausnutzung eines Phasenwechsels deutlich höher als bei herkömmlichen Stackmaterialien liegt. Wie in Kapitel 3.5 beschrieben ist für den Wärmetransport in einer Heatpipe eine Temperaturdifferenz von nur 1 K erforderlich. Somit eignet sich das in Kapitel 5.3 vorgestellte Kühlkonzept, um potentiell Stacks mit großen aktiven MEA-Flächen ( $> 500 \text{ cm}^2$ ) zu kühlen.

### 10.3 Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle

Bei der Diskussion der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle ist vor allem der Einfluss des Kühlkonzeptes dominant. Wie aus den Kapiteln 5.1, 5.2, 6.2 und 5.3.2 hervorgeht, ist zwar die aktive MEA-Fläche aller hier verglichenen Konzepte mit  $200 \text{ cm}^2$  identisch, allerdings unterscheiden sich die Konzepte durch die Anzahl der von einer Kühlzelle gekühlten Brennstoffzellen. Um den Einfluss beurteilen zu können, ist die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle der verschiedenen Kühlkonzepte in Abbildung 10-2 dargestellt.



**Abbildung 10-2: Einfluss der verschiedenen Kühlkonzepte auf die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$**

In Abbildung 10-2 ist der Einfluss der Kühlzellen zu erkennen. Wie die Abschätzung der Temperaturverteilung in Kapitel 5.2.1 gezeigt hat, sinken die Temperaturen über die Kühlzellen ab und steigen über die wärmeerzeugenden Bereiche an. Überlagert wird der Effekt von einem Temperaturabfall hin zu den Endplatten des Stacks, der aufgrund der nicht idealen thermischen Isolierung zustande kommt. Besonders ausgeprägt ist dies bei den intern gekühlten Stackkonzepten zu erkennen. Die Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle steigt von 4,9 auf 13,3 K, wenn nur jede dritte Zelle statt jede Zelle mit Wärmeträgerflüssigkeit intern gekühlt wird. Da nur jede dritte Zelle gekühlt wird, muss mehr Wärme (175 statt 78 W) über die Kühlzellen abgeführt werden. Außerdem erhöht sich die Distanz über die die Wärmeleitung stattfindet von 3,3 auf 9,5 mm. Wie aus der Fourier'schen Gleichung (3-19) der Wärmeleitung hervorgeht, muss die Temperaturdifferenz dadurch steigen.

## 10.4 Temperaturverteilung über die Stromdichte

Bei allen untersuchten Stackkonzepten ist ein Anstieg der mittleren Stacktemperatur mit steigender Stromdichte und dem damit verbundenen steigenden abzuführenden Wärmestrom zu beobachten. Der Anstieg des Temperaturniveaus im Stack ist im Wesentlichen auf die ungeregelten Wärmeträgermedieneintrittsbedingungen zurückzuführen. Das Temperaturniveau ergibt sich bei der Berechnung des Wärmeübergangs aus der Ein- und Austrittstemperatur des Wärmeträgermediums sowie dem Temperaturanstieg infolge des Wärmeübergangs von der Strömungskanalwand auf das Wärmeträgermedium. Somit steigt das Temperaturniveau im Stack bei konstanter Eintrittstemperatur und konstantem Volumenstrom, da die Austrittstemperatur bei höherem abzuführendem Wärmestrom steigen muss. Wird die Brennstoffzelle als Wärmeübertrager betrachtet, sind die Stacktemperaturen die mittlere Temperatur aus Wärmeträgerein- und Wärmeträgeraustrittstemperatur addiert mit dem Temperaturanstieg aufgrund des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf das Wärmeträgermedium sowie der Wärmeleitung. Mit steigendem abzuführendem Wärmestrom steigt somit die mittlere Temperatur und damit die Stacktemperatur an. Die Steigung hängt von der Austrittstemperatur ab und wird somit durch den Massenstrom geregelt. Schematisch ist das in Abbildung 10-3 skizziert.

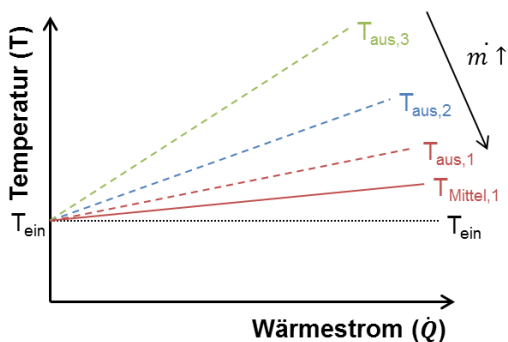
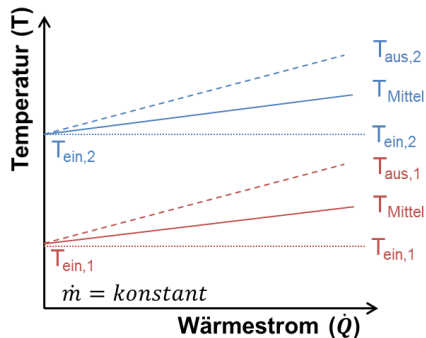


Abbildung 10-3: Prinzip des Temperaturverlaufes in Abhängigkeit vom Massenstrom über dem abzuführenden Wärmestrom

Aus Abbildung 10-3 wird deutlich, dass bei einer Kühlmedienaustrittstemperatur  $T_{aus,3}$  die Steigung der mittleren Temperaturlinie größer wäre als bei einer aus der Massenstromerhöhung resultierenden niedrigeren Kühlmedienaustrittstemperatur  $T_{aus,1}$ . Ein theoretisch gegen unendlich gehender Massenstrom würde dazu führen, dass die Austrittstemperatur gegen die Eintrittstemperatur strebt. Das Resultat wäre ein isothermer Stacktemperaturverlauf über dem abzuführenden Wärmestrom. In der Praxis ist dies aber nicht möglich, da die Wärmeübertragung von der Brennstoffzelle auf das Wärmeträgermedium durch den begrenzten Wärmeübergang limitiert wird.

Wird nicht der Massenstrom sondern die Eintrittstemperatur des Wärmeträgermediums variiert, ist zu beobachten, dass die Temperaturanstiege ebenfalls linear verlaufen, die Steigung allerdings konstant bleibt und die Temperaturverläufe nahezu parallel mit steigender Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit verschoben werden. Eine Erklärung findet sich ebenfalls in der Betrachtung der Brennstoffzelle als Wärmeübertrager. In Gleichung (5-1) ist in diesem Fall der Massenstrom konstant und die Eintrittstemperatur variabel. Die mittlere Temperatur und damit die Stacktemperatur, berechnen sich wieder aus der Ein- und Austrittstemperatur des Wärmeträgermediums. Entscheidend ist aber, dass die Differenz aus beiden unabhängig von der Eintrittstemperatur ist. Folglich findet nur die in Abbildung 10-4 skizzierte Parallelverschiebung der Temperaturverläufe statt.



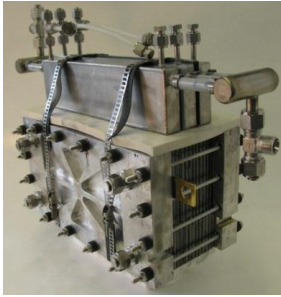
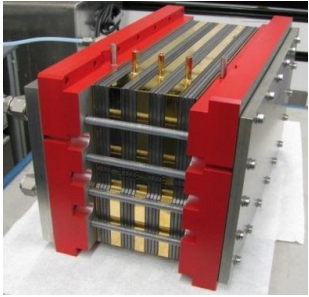
**Abbildung 10-4: Prinzip des Temperaturverlaufes in Abhängigkeit von der Eintrittstemperatur des Wärmeträgermediums**

Durch Regelung der Eintrittsbedingungen, kann bei steigendem abzuführenden Wärmestrom die Stacktemperatur im begrenzten Rahmen konstant gehalten werden, allerdings wird die Erhöhung des Volumenstroms durch den Wärmeübergang von der Kanalwand auf das Wärmeträgermedium beschränkt (vgl. Abschnitt 10.2) und das Absenken der Eintrittstemperatur führt zu höheren Temperaturdifferenzen im Stack. Die Erhöhung der Temperaturdifferenz gilt allerdings nur in beschränktem Maße für die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung. Durch die Regelung der Eintrittsbedingungen lässt sich gerade bei diesem Stackkonzept der Bereich erweitern, in dem die Stacks im optimalen Betriebstemperaturbereich betrieben werden können.

## 10.5 Auswahl des Kühlkonzeptes

In Kapitel 8 wurden bereits auf Grundlage der definierten Anforderungen die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung und die interne Kühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks der kW-Klasse im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit als am besten geeignet identifiziert (vgl. Tabelle 8-5). In Tabelle 10-1 sind die wesentlichen Kennwerte zusammengefasst.

**Tabelle 10-1: Wesentliche Kennwerte der Untersuchungen aus Kapitel 5.3, 5.2 und 1**

	Externe Heatpipe-unterstützte Kühlung	Kühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen
		
Temperaturdifferenz in der MEA-Ebene	4,4 K (bei $j=500 \text{ mA cm}^{-2}$ )	7,0 K (bei $j=500 \text{ mA cm}^{-2}$ )
Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle	9,2 K (bei $j=450 \text{ mA cm}^{-2}$ )	8,3 K (bei $j=450 \text{ mA cm}^{-2}$ )
Betriebsbereich, geregelte Kühlung ( $160^\circ\text{C} < T < 180^\circ\text{C}$ )	0 - 550 $\text{mA cm}^{-2}$	0 - 850 $\text{mA cm}^{-2}$

Wie in Tabelle 10-1 zu erkennen ist und in Abschnitt 10.2 diskutiert wurde, ist die Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche bei der Heatpipe-unterstützten externen Kühlung geringer als bei der internen Kühlung mit gekapselten Kühlzellen. Falls der Einsatz großer aktiver MEA-Flächen erforderlich ist, ist die Heatpipe-unterstützte externe Kühlung zu bevorzugen. Nachteilig ist jedoch die erforderliche Regelung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen, um den Stack in einem Stromdichtebereich von 0 bis 550  $\text{mA cm}^{-2}$  zu betreiben. Daher ist bei diesem Aufbau der Stack eher für den stationären Betrieb geeignet. Alternativ könnte durch eine größere Anzahl von Heatpipes oder eine größere Wärmeübertragungsfläche in der Wärmeträgerflüssigkeit der Betriebsbereich erweitert werden. Das Kühlkonzept bietet das Potential, um Stacks der kW-Klasse extern zu kühlen. Ein großer Vorteil des Kühlkonzeptes gegenüber der internen Kühlung mit in den Bipolarplatten integrierten Kühlkanälen ist die Verlagerung der Dichtungsproblematik in unkritische Bereiche außerhalb des Stacks. Damit verringert sich die Vergiftungsgefahr für die MEA. Durch den Einsatz von Heatpipes wird die Temperaturverteilung in der MEA-Ebene homogenisiert. Dadurch ist die Heatpipe-



unterstützte externe Kühlung sehr gut geeignet, um HT-PEFC-Stacks mit aktiven MEA-Flächen von über 200 cm<sup>2</sup> im Reformatbetrieb aktiv zu temperieren.

Die interne aktive Kühlung mit gekapselten Kühlzellen zeichnet sich durch die Möglichkeit einer unregelmäßigen Kühlung in einem großen Stromdichtebereiche aus. Sie eignet sich somit insbesondere für Anwendungen die einen dynamischen Stackbetrieb erfordern. Allerdings ist die Größe der aktiven MEA-Fläche limitiert. Die Dichtungsproblematik ist durch die Kapselung wesentlich verringert. So wurde ein Stack über 3500 h betrieben, ohne Undichtigkeiten festzustellen. Verbesserungspotential birgt vor allem das Kühlplattendesign. Hier könnten schmalere und leichtere Kühlplatten Vorteile in der volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte bringen. Insgesamt ist die gekapselte Ölkühlung jeder dritten Zelle gut geeignet, um HT-PEFC-Stacks mit einer Leistungserzeugung von 5 kW<sub>el</sub> im Reformatbetrieb aktiv zu temperieren.

## 11 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstacks betrachtet. Dabei orientieren sich die Untersuchungen an drei zentralen Fragestellungen:

1. Ist das Kühlkonzept für den Einsatz in der HT-PEFC geeignet?
2. Ist eine ausreichende Kühlung für einen Stack der kW-Klasse gewährleistet?
3. Welches Kühlkonzept eignet sich für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFC-Stacks im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem als Bordstromerzeugungseinheit?

Zur Klärung dieser Fragen, wurden in einem ersten Schritt geeignete Kühlkonzepte identifiziert, die sich zur Kühlung von HT-PEFCs eignen. Diese Kühlkonzepte wurden nach dem verwendeten Wärmeträgermedium: Wasser, Luft und Wärmeträgerflüssigkeit eingeteilt. Zur Beantwortung der Fragen 2 und 3 bedurfte es einer genaueren Betrachtung der Anforderungen, die sich aus den Fragestellungen ergeben. Die untersuchte Brennstoffzelle soll zur Bordstromerzeugung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem eingesetzt werden. Dazu ist eine ausreichende Kühlung für Stacks mit einer Leistung von mindestens  $1 \text{ kW}_{\text{el}}$  erforderlich. Darüber hinaus erfordert die Anwendung einen dynamischen Stackbetrieb. Das Kühlkonzept muss folglich in der Lage sein, den Stack von Umgebungstemperatur auf mindestens  $120^\circ\text{C}$  aufzuheizen. Außerdem soll die Kühlung Betriebstemperaturen zwischen  $160$  und  $180^\circ\text{C}$  bei einer dynamischen Leistungserzeugung im gesamten Betriebsbereich von  $0$  bis  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  ermöglichen. Der Betrieb der Brennstoffzelle mit einem Kohlenmonoxid haltigen Reformat ( $1 \text{ Vol.-% CO}$ ) erfordert Betriebstemperaturen von mehr als  $160^\circ\text{C}$ . Die Betriebstemperaturobergrenze liegt bei  $180^\circ\text{C}$  bedingt durch die Restriktionen der eingesetzten Materialien und der deutlich erhöhten Degradationsrate der MEA bei Temperaturen über  $180^\circ\text{C}$ .

Ausgehend vom System sind die Anforderungen einer möglichst effizienten Verwendung des abzuführenden Wärmestroms, einer möglichst geringen Komplexität des Kühlsystems und einer möglichst geringen parasitären Leistungsaufnahme durch das Kühlsystem zu erfüllen. Um diese Kriterien und Anforderungen beurteilen zu können, wurden die identifizierten Kühlkonzepte weitergehend untersucht. Dies erfolgte mit Hilfe von theoretischen Auslegungen. Zur Verifikation der analytischen Abschätzungen wurden gegebenenfalls experimentelle Untersuchungen oder 3D-CFD-Simulationen der betrachteten Kühlkonzepte anhand von Stacks mit einer aktiven MEA-Fläche von  $200 \text{ cm}^2$  durchgeführt. Dabei zeigte sich, dass sowohl die Auswahl des Wärmeträgermediums als auch die des Kühlsystems entscheidenden Einfluss auf die Eignung haben.

- Die Untersuchungen der Kühlkonzepte mit Wasser als Wärmeträgermedium haben gezeigt, dass sowohl für die Verdampfungskühlung als auch für die Kühlung mit flüssigem Wasser, der Druck im Kühlkreislauf mehr als  $6 \text{ bar}$  betragen muss.

- Bei der Untersuchung der externen passiven Kühlung, bei der die Wärme von der Stackoberfläche über freie Konvektion und Strahlung abgeführt wird, konnte gezeigt werden, dass selbst Geometrien mit großen Oberflächen im Verhältnis zur aktiven MEA-Fläche keine ausreichende Kühlleistung im gesamten Betriebsbereich der HT-PEFC aufweisen. Der Betrieb eines 10-zelligen HT-PEFC-Stacks mit einer aktiven Zellfläche von  $200 \text{ cm}^2$  ist nur bis zu einer Stromdichte von unter  $115 \text{ mA cm}^{-2}$  möglich. Die Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche beträgt in diesem Betriebspunkt  $16,3 \text{ K}$ . Das Kühlkonzept eignet sich somit nicht.
- Die Kühlung mit Hilfe der Kathodenluft funktioniert zwar prinzipiell mit einem Luftüberschuss von  $\lambda_K=18$ , der Druckverlust in der verwendeten Mäanderkanalstruktur und die damit verbundene parasitäre Leistungsaufnahme ( $> 10 \%$  der Stackleistung) ist aber zu hoch.
- Die interne aktive Luftkühlung, mit in den Bipolarplatten integrierten separaten Kühlkanälen eignet sich, um HT-PEFC-Stacks mit Umgebungsluft zu kühlen. Eine Regelung des Kühlluft-Normvolumenstroms zwischen  $0$  und  $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  ist notwendig um eine ausreichende Kühlung zu gewährleisten. Die gemessene mittlere Stacktemperatur liegt im optimalen Betriebstemperaturbereich zwischen  $160$  und  $180 \text{ °C}$  im gesamten Betriebsbereich zwischen  $0$  und  $700 \text{ mA cm}^{-2}$ . Als Nachteil erweist sich die hohe parasitäre Leistungsaufnahme von über  $10 \%$  bei Stackleistungen über  $590 \text{ W}_{\text{el}}$  sowie die Notwendigkeit einer zusätzlichen elektrischen Heizung. Somit ist die Luftkühlung ebenfalls nicht für die Anwendung zur Kühlung von Stack der kW-Klasse im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem geeignet.
- Bei der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder Zelle, mit in den Bipolarplatten integrierten Kühlkanälen zeigt sich, dass bei konstanten Eintrittsbedingungen von  $T_{\text{WT, ein}}=160 \text{ °C}$  und  $\dot{V}_{\text{WT, ein}}=6 \text{ L min}^{-1}$  ein Betrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich im gesamten Stromdichtebereich möglich ist. Die maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle beträgt bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$   $5,5 \text{ K}$ , die Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche  $5,8 \text{ K}$ . Eine Regelung der Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit ist nicht notwendig. Aufgrund der Anfälligkeit gegenüber Leckagen erfordert dieses Kühlkonzept ein weiter verbessertes Dichtungskonzept.
- Die interne Kühlung mit gekapselten Kühlzellen aus Edelstahl verringert das Risiko von Leckagen. Der Betrieb einer Kühlung von jeder dritten Zelle ist möglich. Das Kühlkonzept wurde an einem Stack mit einer Leistungserzeugung von  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  in Modulbauweise demonstriert. Im Betriebspunkt  $j=450 \text{ mA cm}^{-2}$  konnten die Stacktemperaturen unterhalb der Betriebstemperaturgrenze von  $180 \text{ °C}$  gehalten werden. Die maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle betrug in diesem Betriebspunkt  $8,3 \text{ K}$ . Die Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche erhöht sich durch die Kühlung von nur jeder dritten Zelle im Vergleich zur Kühlung jeder Zelle von  $6,8 \text{ K}$  auf  $16,9 \text{ K}$  im Betriebspunkt  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  bei gleichen Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit von  $T_{\text{WT, ein}}=160 \text{ °C}$  und  $\dot{V}_{\text{WT, ein}}=4 \text{ L min}^{-1}$ . Die Größe der aktiven MEA-Fläche bei der internen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung ist daher limitiert.

- 
- Bei der Heatpipe-unterstützten externen Wärmeträgerflüssigkeitskühlung wird die Wärme durch hochwärmeleitfähige Heatpipes in externe Bereiche des Stacks geleitet, wo der Wärmeübergang an die Wärmeträgerflüssigkeit erfolgt. Aufgrund des hohen Wärmetransportvermögens der Heatpipes ist die Temperaturdifferenz über der aktiven MEA-Fläche vergleichsweise niedrig. Im Betriebspunkt  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt sie  $4,7 \text{ K}$  bei Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit von  $T_{WT,ein}=120 \text{ °C}$  und  $\dot{V}_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$ . Bei diesem Kühlkonzept ist die Regelung der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit notwendig, wenn ein Betrieb im gesamten Stromdichtebereich von  $0$  bis  $700 \text{ mA cm}^{-2}$  ermöglicht werden soll. Durch den externen Wärmeübergang an die Wärmeträgerflüssigkeit wird das Dichtungsproblem in unkritische Bereiche außerhalb des Stacks verlagert. Der Einsatz der Heatpipes ermöglicht es, den Wärmeübergang von den Heatpipes an das Wärmeträgermedium so zu regeln, dass eine hohe Temperaturdifferenz zwischen Wärmeträgerflüssigkeit und Stack vorliegen kann. Somit wäre auch Wasser als Wärmeträgermedium möglich.

Die gewonnenen Erkenntnisse gelten vor allem für das untersuchte HT-PEFC-System im Reformatbetrieb, mit den Anforderungen für den Einsatz zur Bordstromversorgung. Verbesserungen im Zellwirkungsgrad resultieren beispielsweise in einem geringeren abzuführenden Wärmestrom. Auch könnte der Einsatz neuer Materialien (vor allem in der MEA) dazu führen, dass sich der Betriebstemperaturbereich zu höheren Temperaturen verschiebt. Durch den Einsatz von metallischen Bipolarplatten kann eine weitere Steigerung der volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte erzielt werden. Dies ist bei der Auslegung und Optimierung zukünftiger Kühlkonzepte zu beachten.

Insgesamt erweisen sich die Wärmeträgerflüssigkeitskühlungen mit gekapselten Kühlzellen und die externe Heatpipe-unterstützte Kühlung als die am besten geeigneten Kühlkonzepte, um einen dauerhaft sicheren Stackbetrieb zur Bordstromerzeugung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem zu ermöglichen. Anhand der in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse ergeben sich auf die eingangs gestellten drei Fragen die folgenden Antworten:

1. Für den Einsatz zur Kühlung von HT-PEFCs eignen sich alle aktiven Kühlkonzepte, die Wärmeträgerflüssigkeit, Luft oder Wasser als Kühlmedium verwenden.
2. Die drei Wärmeträgermedien sind geeignet um Stacks der kW-Klasse zu kühlen. Eine Regelung der Eintrittsparameter des Wärmeträgermediums ist aber bei der Verwendung von Luft (Volumenstrom) erforderlich und bei Wärmeträgerflüssigkeit (Eintrittstemperatur) vorteilhaft bzw. bei der externen Kühlung erforderlich.
3. Die Wasserkühlung unter Berücksichtigung des latenten Wärmeübergangs zeigt das höchste Potential, allerdings verhindert der bei diesem Kühlkonzept notwendige Druck im Kühlkreislauf den Einsatz mit aktuellen Stackmaterialien. Wärmeträgerflüssigkeitskühlkonzepte sind vor allem aufgrund der geringen parasitären Leistungsaufnahme durch die Kühlmittelpumpe am praktikabelsten zur Kühlung von Stacks der kW-Klasse für den Einsatz als Bordstromversorgung im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem.



## Literatur

- [1] Faghri, A., and Guo, Z., 2005, "Challenges and opportunities of thermal management issues related to fuel cell technology and modeling," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 48(19-20), pp. 3891-3920.
- [2] Appleby, A. J., 1988, *Fuel cell handbook*, Van Nostrand Reinhold Co. Inc., New York.
- [3] Mench, M. M., 2008, "Polymer Electrolyte Fuel Cells," *Fuel Cell Engines*, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, USA, pp. 285-379.
- [4] Wang, Y., Chen, K. S., Mishler, J., Cho, S. C., and Adroher, X. C., 2011, "A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: Technology, applications, and needs on fundamental research," *Applied Energy*, 88(4), pp. 981-1007.
- [5] Blesl, M., Bruchof, D., Hartmann, N., Özdemir, E. D., Fahl, U., Eltrop, L., and Voß, A., 2010, "Entwicklungsstand und Perspektiven der Elektromobilität : Endbericht," *Universitätsbibliothek der Universität Stuttgart*, Stuttgart.
- [6] von Helmolt, R., and Eberle, U., 2007, "Fuel cell vehicles: Status 2007," *J. Power Sources*, 165(2), pp. 833-843.
- [7] Chan, C. C., 2007, "The State of the Art of Electric, Hybrid, and Fuel Cell Vehicles," *Proceedings of the IEEE*, 95(4), pp. 704-718.
- [8] Pasel, J., Meißner, J., Porš, Z., Samsun, R. C., Tschauder, A., and Peters, R., 2007, "Autothermal reforming of commercial Jet A-1 on a scale," *Int. J. Hydrogen Energy*, 32(18), pp. 4847-4858.
- [9] Vogel, W., Lundquist, L., Ross, P., and Stonehart, P., 1975, "Reaction pathways and poisons—II: The rate controlling step for electrochemical oxidation of hydrogen on Pt in acid and poisoning of the reaction by CO," *Electrochim. Acta*, 20(1), pp. 79-93.
- [10] Zhang, J., Xie, Z., Tang, Y., Song, C., Navessin, T., Shi, Z., Song, D., Wang, H., and Wilkinson, D., 2006, "High temperature PEM fuel cells," *J. Power Sources*, 160(2), pp. 872-891.
- [11] Lee, S. J., Mukerjee, S., Ticianelli, E. A., and McBreen, J., 1999, "Electrocatalysis of CO tolerance in hydrogen oxidation reaction in PEM fuel cells," *Electrochim. Acta*, 44(19), pp. 3283-3293.
- [12] Berg, P., Promislow, K., Pierre, J. S., Stumper, J., and Wetton, B., 2004, "Water management in PEM fuel cells," *J. Electrochem. Soc.*, 151(3), pp. A341-A353.
- [13] Boillat, P., Oberholzer, P., Kaestner, A., Siegrist, R., Lehmann, E., Scherer, G., and Wokaun, A., 2012, "Impact of Water on PEFC Performance Evaluated by Neutron Imaging Combined with Pulsed Helox Operation," *J. Electrochem. Soc.*, 159(7), pp. F210-F218.
- [14] Schmidt, T. J., 2006, "Durability and Degradation in High-Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells," *ECS Trans.*, 1(8), pp. 19-31.

- [15] Wannek, C., Kohnen, B., Oetjen, H. F., Lippert, H., and Mergel, J., 2008, "Durability of ABPBI-based MEAs for High Temperature PEMFCs at Different Operating Conditions," *Fuel Cells*, 8(2), pp. 87-95.
- [16] Korsgaard, A. R., Refshauge, R., Nielsen, M. P., Bang, M., and Kær, S. K., 2006, "Experimental characterization and modeling of commercial polybenzimidazole-based MEA performance," *J. Power Sources*, 162(1), pp. 239-245.
- [17] Xu, H., Song, Y., Kunz, H. R., and Fenton, J. M., 2006, "Operation of PEM fuel cells at 120–150°C to improve CO tolerance," *J. Power Sources*, 159(2), pp. 979-986.
- [18] Jensen, J., Li, Q., Pan, C., Vestbo, A., Mortensen, K., Nybopetersen, H., Lausoren, C., Nedergaardclausen, T., Schramm, J., and Bjerrum, N., 2007, "High temperature PEMFC and the possible utilization of the excess heat for fuel processing," *Int. J. Hydrogen Energy*, 32(10-11), pp. 1567-1571.
- [19] Andreasen, S. J., 2009, Design and control of high temperature PEM fuel cell system, Videnbasen for Aalborg UniversitetVBN, Aalborg UniversitetAalborg University, Det Teknisk-Naturvidenskabelige FakultetThe Faculty of Engineering and Science, Termiske energisystemerThermal Energy Systems.
- [20] Pandiyan, S., Jayakumar, K., Rajalakshmi, N., and Dhathathreyan, K. S., 2008, "Thermal and electrical energy management in a PEMFC stack – An analytical approach," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 51(3–4), pp. 469-473.
- [21] Asghari, S., Akhgar, H., and Imani, B. F., 2011, "Design of thermal management subsystem for a 5kW polymer electrolyte membrane fuel cell system," *J. Power Sources*, 196(6), pp. 3141-3148.
- [22] Lüke, L., Eingereichte Dissertation an der Fakultät für Maschinenwesen der RWTH Aachen: Mai 2013, Analyse des Betriebsverhaltens von Hochtemperatur-Polymerelektroly-Brennstoffzellen, Aachen.
- [23] Lobato, J., Cañizares, P., Rodrigo, M. A., Linares, J. J., and Pinar, F. J., 2010, "Study of the influence of the amount of PBI–H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> in the catalytic layer of a high temperature PEMFC," *Int. J. Hydrogen Energy*, 35(3), pp. 1347-1355.
- [24] Oono, Y., Fukuda, T., Sounai, A., and Hori, M., 2010, "Influence of operating temperature on cell performance and endurance of high temperature proton exchange membrane fuel cells," *J. Power Sources*, 195(4), pp. 1007-1014.
- [25] Jalani, N. H., Ramani, M., Ohlsson, K., Buelte, S., Pacifico, G., Pollard, R., Staudt, R., and Datta, R., 2006, "Performance analysis and impedance spectral signatures of high temperature PBI–phosphoric acid gel membrane fuel cells," *J. Power Sources*, 160(2), pp. 1096-1103.
- [26] Zhang, G., and Kandlikar, S. G., 2012, "A critical review of cooling techniques in proton exchange membrane fuel cell stacks," *Int. J. Hydrogen Energy*, 37(3), pp. 2412-2429.
- [27] Reddy, E. H., Monder, D. S., and Jayanti, S., 2013, "Parametric study of an external coolant system for a high temperature polymer electrolyte membrane fuel cell," *Applied Thermal Engineering*, 58(1–2), pp. 155-164.

- [28] Firat, E., Bandlamudi, G., Beckhaus, P., and Heinzl, A., 2012, "Heat Pipe Assisted Thermal Management of a HT PEMFC Stack," Proceedings of the 2012 COMSOL Conference in Milan.
- [29] Andreasen, S. J., and Kær, S. K., 2008, "Modelling and evaluation of heating strategies for high temperature polymer electrolyte membrane fuel cell stacks," *Int. J. Hydrogen Energy*, 33(17), pp. 4655-4664.
- [30] Andreasen, S. r. J., and Kær, S. r. K., 2007, "400 W High Temperature PEM Fuel Cell Stack Test," *ECS Trans.*, 5(1), pp. 197-207.
- [31] Scholta, J., Messerschmidt, M., Jörisen, L., and Hartnig, C., 2009, "Externally cooled high temperature polymer electrolyte membrane fuel cell stack," *J. Power Sources*, 190(1), pp. 83-85.
- [32] Scholta, J., Zhang, W., Jörisen, L., and Lehnert, W., 2008, "Conceptual Design for an Externally Cooled HT-PEMFC Stack," *ECS Trans.*, 12(1), pp. 113-118.
- [33] Song, T.-W., Choi, K.-H., Kim, J.-R., and Yi, J. S., 2011, "Pumpless thermal management of water-cooled high-temperature proton exchange membrane fuel cells," *J. Power Sources*, 196(10), pp. 4671-4679.
- [34] Taccani, R., and Zuliani, N., 2011, "Effect of flow field design on performances of high temperature PEM fuel cells: Experimental analysis," *Int. J. Hydrogen Energy*, 36(16), pp. 10282-10287.
- [35] Lüke, L., Janßen, H., Kvesić, M., Lehnert, W., and Stolten, D., 2012, "Performance analysis of HT-PEFC stacks," *Int. J. Hydrogen Energy*, 37(11), pp. 9171-9181.
- [36] Stevens, D. A., and Dahn, J. R., 2005, "Thermal degradation of the support in carbon-supported platinum electrocatalysts for PEM fuel cells," *Carbon*, 43(1), pp. 179-188.
- [37] Li, Q., Jensen, J. O., Savinell, R. F., and Bjerrum, N. J., 2009, "High temperature proton exchange membranes based on polybenzimidazoles for fuel cells," *Prog. Polym. Sci.*, 34(5), pp. 449-477.
- [38] Kandlikar, S. G., and ZHIE, L., 2009, "Fundamental research needs in combined water and thermal management within a proton exchange membrane fuel cell stack under normal and cold-start conditions," *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, 6(4).
- [39] Dai, W., Wang, H., Yuan, X.-Z., Martin, J. J., Yang, D., Qiao, J., and Ma, J., 2009, "A review on water balance in the membrane electrode assembly of proton exchange membrane fuel cells," *Int. J. Hydrogen Energy*, 34(23), pp. 9461-9478.
- [40] Zong, Y., Zhou, B., and Sobiesiak, A., 2006, "Water and thermal management in a single PEM fuel cell with non-uniform stack temperature," *J. Power Sources*, 161(1), pp. 143-159.
- [41] Owejan, J. P., Trabold, T. A., Gagliardo, J. J., Jacobson, D. L., Carter, R. N., Hussey, D. S., and Arif, M., 2007, "Voltage instability in a simulated fuel cell stack correlated to cathode water accumulation," *J. Power Sources*, 171(2), pp. 626-633.
- [42] Lu, Z., Daino, M. M., Rath, C., and Kandlikar, S. G., 2010, "Water management studies in PEM fuel cells, part III: Dynamic breakthrough and intermittent drainage



characteristics from GDLs with and without MPLs," *Int. J. Hydrogen Energy*, 35(9), pp. 4222-4233.

[43] Lu, Z., Kandlikar, S. G., Rath, C., Grimm, M., Domigan, W., White, A. D., Hardbarger, M., Owejan, J. P., and Trabold, T. A., 2009, "Water management studies in PEM fuel cells, Part II: Ex situ investigation of flow maldistribution, pressure drop and two-phase flow pattern in gas channels," *Int. J. Hydrogen Energy*, 34(8), pp. 3445-3456.

[44] Owejan, J. P., Gagliardo, J. J., Sergi, J. M., Kandlikar, S. G., and Trabold, T. A., 2009, "Water management studies in PEM fuel cells, Part I: Fuel cell design and in situ water distributions," *Int. J. Hydrogen Energy*, 34(8), pp. 3436-3444.

[45] Zhang, G., Guo, L., Ma, L., and Liu, H., 2010, "Simultaneous measurement of current and temperature distributions in a proton exchange membrane fuel cell," *J. Power Sources*, 195(11), pp. 3597-3604.

[46] Stumper, J., Campbell, S. A., Wilkinson, D. P., Johnson, M. C., and Davis, M., 1998, "In-situ methods for the determination of current distributions in PEM fuel cells," *Electrochim. Acta*, 43(24), pp. 3773-3783.

[47] Liu, Z., Mao, Z., Wu, B., Wang, L., and Schmidt, V. M., 2005, "Current density distribution in PEFC," *J. Power Sources*, 141(2), pp. 205-210.

[48] Beckhaus, P., Burfeind, J., Bandlamudi, G., and Heinzl, A., 2010, Experience in Stack Development for High Temperature PEM Fuel Cells, 18th World Hydrogen Energy Conference 2010 - WHEC 2010 proceedings : parallel sessions book Fuel cell basics ; fuel infrastructures / ed.: Detlef Stolten, Schriften des Forschungszentrums Jülich / Energy & Environment, Jülich.

[49] Andreasen, S. J., Ashworth, L., Menjón Remón, I. N., and Kær, S. K., 2008, "Directly connected series coupled HTPEM fuel cell stacks to a Li-ion battery DC bus for a fuel cell electrical vehicle," *Int. J. Hydrogen Energy*, 33(23), pp. 7137-7145.

[50] Jensen, H.-C. B., and Kær, S. K., 2011, "Boundary model-based reference control of blower cooled high temperature polymer electrolyte membrane fuel cells," *Int. J. Hydrogen Energy*, 36(8), pp. 5030-5037.

[51] Kurz, T., and Keller, J., 2011, "Heat Management in a Portable High Temperature PEM Fuel Cell Module with Open Cathode," *Fuel Cells*, 11(4), pp. 518-525.

[52] Harikishan Reddy, E., and Jayanti, S., 2012, "Thermal management strategies for a 1 kWe stack of a high temperature proton exchange membrane fuel cell," *Applied Thermal Engineering*, 48(0), pp. 465-475.

[53] Abdul-Aziz, A., and Alkasab, K. A., 1994, "Performance of serpentine passages in the cooling system of a phosphoric acid fuel cell stack," *Experimental Thermal and Fluid Science*, 8(1), pp. 101-111.

[54] Sohn, Y., Park, G., Yang, T., Yoon, Y., Lee, W., Yim, S., and Kim, C., 2005, "Operating characteristics of an air-cooling PEMFC for portable applications," *J. Power Sources*, 145(2), pp. 604-609.

- [55] Atan, R., and W.M. W. A. N., 2012, "Temperature Profiles of an Air-Cooled Pem Fuel Cell Stack Under Active and Passive Cooling Operation," *Procedia Engineering*, 41(0), pp. 1735-1742.
- [56] Zuliani, N., and Taccani, R., 2012, "Microcogeneration system based on HTPEM fuel cell fueled with natural gas: Performance analysis," *Applied Energy*, 97(0), pp. 802-808.
- [57] Sasmito, A. P., Shamim, T., Birgersson, E., and Mujumdar, A. S., 2012, "Computational Study of Edge Cooling for Open-Cathode Polymer Electrolyte Fuel Cell Stacks," *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, 9(6), p. 061008.
- [58] Larminie, J., and Dicks, A., 2003, *Fuel Cell Systems Explained* (2nd Edition), John Wiley & Sons, West Sussex, England.
- [59] Squadrito, G., Giaccoppo, G., Barbera, O., Urbani, F., Passalacqua, E., Borello, L., Musso, A., and Rosso, I., 2010, "Design and development of a 7kW polymer electrolyte membrane fuel cell stack for UPS application," *Int. J. Hydrogen Energy*, 35(18), pp. 9983-9989.
- [60] Produktinformation: Fragol, "FRAGOL THERM® S-15-A", Web Page, 04.07.2012 <http://www.fragol.de/produkte/waermetraegerfluessigkeiten/produktuebersicht/fragoltherm-R-s-15-a.html>.
- [61] Arsalis, A., Nielsen, M. P., and Kær, S. K., 2012, "Modeling and optimization of a 1 kWe HT-PEMFC-based micro-CHP residential system," *Int. J. Hydrogen Energy*, 37(3), pp. 2470-2481.
- [62] Moçotéguy, P., Ludwig, B., Scholta, J., Barrera, R., and Ginocchio, S., 2009, "Long Term Testing in Continuous Mode of HT-PEMFC Based H3PO4/PBI Celtec-P MEAs for  $\mu$ -CHP Applications," *Fuel Cells*, 9(4), pp. 325-348.
- [63] Moçotéguy, P., Ludwig, B., Scholta, J., Nedellec, Y., Jones, D. J., and Rozière, J., 2010, "Long-Term Testing in Dynamic Mode of HT-PEMFC H3PO4/PBI Celtec-P Based Membrane Electrode Assemblies for Micro-CHP Applications," *Fuel Cells*, 10(2), pp. 299-311.
- [64] Karstedt, J., Ogrzewalla, J., Severin, C., and Pischinger, S., 2011, "Development and design of experiments optimization of a high temperature proton exchange membrane fuel cell auxiliary power unit with onboard fuel processor," *J. Power Sources*, 196(23), pp. 9998-10009.
- [65] Janßen, H., Supra, J., Lüke, L., Lehnert, W., and Stolten, D., 2013, "Development of HT-PEFC stacks in the kW range," *Int. J. Hydrogen Energy*, 38(11), pp. 4705-4713.
- [66] Singdeo, D., Dey, T., and Ghosh, P. C., 2011, "Modelling of start-up time for high temperature polymer electrolyte fuel cells," *Energy*, 36(10), pp. 6081-6089.
- [67] Apley, R., Burandt, B., and Müller, N., 1998, *Grundlagenuntersuchungen energierationeller Kreisprozesse mit Wasser als Kältemittel und Erprobung einer Versuchs-Grossanlage : Abschlussbericht / Rainer Apley ; Bodo Burandt ; Norbert Müller, Dresden.*
- [68] Hashmi, S. M. H., 2010, *Cooling Strategies for PEM FC Stacks*, Bibliothek der HSU, Hamburg.

- [69] Brambilla, M., and Mazzucchelli, G., 2000, "Fuel cell with cooling system based on direct injection of liquid water," International Patent Classification 6835477.
- [70] Darling, R., Meyers, J. P., and Balliet, R. J., 2009, "Non-circulating coolant PEM fuel cell power plant assembly with low thermal mass," Google Patents.
- [71] Darling, R. M., and Perry, M. L., 2011, "Evaporatively cooled hybrid PEM fuel cell power plant assembly," Google Patents.
- [72] Perry, M. L., Meyers, J. P., Darling, R. M., Evans, C., and Balliet, R., 2006, "Evaporatively-Cooled PEM Fuel-Cell Stack and System," ECS Trans., 3(1), pp. 1207-1214.
- [73] Reiser, C. A., Meyers, J. P., Johnson, D. D., Evans, C. E., Darling, R. M., Skiba, T., and Balliet, R. J., 2009, "Fuel cells evaporative reactant gas cooling and operational freeze prevention," Google Patents.
- [74] Weber, A. Z., and Darling, R. M., 2007, "Understanding porous water-transport plates in polymer-electrolyte fuel cells," J. Power Sources, 168(1), pp. 191-199.
- [75] Lee, S.-j., Seung, D.-y., and Song, T.-w., 2011, "Passive cooling system for fuel cell stack," Google Patents.
- [76] Flückiger, R., Tiefenauer, A., Ruge, M., Aebi, C., Wokaun, A., and Büchi, F. N., 2007, "Thermal analysis and optimization of a portable, edge-air-cooled PEFC stack," J. Power Sources, 172(1), pp. 324-333.
- [77] Burke, K. A., "Advanced Fuel Cell System Thermal Management for NASA Exploration Missions," Proc. Sixth International Energy Conversion Engineering Conference and Exhibit (IECEC) 2009, National Aeronautics and Space Administration.
- [78] Produktinformation: Panasonic, "Pyrolytic Graphite Sheet", Web Page, 10.06.2013 <http://www.panasonic.com/industrial/electronic-components/protection/pyrolytic-graphite-sheet.aspx>.
- [79] Wen, C.-Y., Lin, Y.-S., and Lu, C.-H., 2009, "Performance of a proton exchange membrane fuel cell stack with thermally conductive pyrolytic graphite sheets for thermal management," J. Power Sources, 189(2), pp. 1100-1105.
- [80] Wen, C.-Y., and Huang, G.-W., 2008, "Application of a thermally conductive pyrolytic graphite sheet to thermal management of a PEM fuel cell," J. Power Sources, 178(1), pp. 132-140.
- [81] Wen, C.-Y., Lin, Y.-S., Lu, C.-H., and Luo, T.-W., 2011, "Thermal management of a proton exchange membrane fuel cell stack with pyrolytic graphite sheets and fans combined," Int. J. Hydrogen Energy, 36(10), pp. 6082-6089.
- [82] Faghri, A., and Guo, Z., 2008, "Integration of Heat Pipe into Fuel Cell Technology," Heat Transfer Eng., 29(3), pp. 232-238.
- [83] Faghri, A., 2005, "Micro heat pipe embedded bipolar plate for fuel cell stacks," International Patent Classification

- [84] Faghri, A., 2005, "Integrated bipolar plate heat pipe for fuel cell stacks," International Patent Classification
- [85] Despont, M., Gross, H., Arrouy, F., Stebler, C., and Staufer, U., 1996, "Fabrication of a silicon-Pyrex-silicon stack by a.c. anodic bonding," *Sensors and Actuators A: Physical*, 55(2–3), pp. 219-224.
- [86] J. Niemasz, T. K., M. Zobel, T. Hutzenlaub, C. Müller, C. Agert, H. Reinecke, 2007, "High Temperature Membrane Fuel Cell with Integrated Heat Pipe," *PowerMEMS Workshop Freiburg / Germany*, pp. 161 - 164.
- [87] Vasiliev, L., 2008, "Heat Pipes in Fuel Cell Technology," *Mini-Micro Fuel Cells*, S. Kakaç, A. Pramuanjaroenkij, and L. Vasiliev, eds., Springer Netherlands, pp. 117-124.
- [88] Bossel, U., "Efficiency of hydrogen fuel cell, diesel-SOFC-hybrid and battery electric vehicles," Technical report, European Fuel Cell Forum, Morgenacherstrasse.
- [89] Barbir, F., 2005, *PEM fuel cells : theory and practice* / Frano Barbir, Elsevier Academic Press, Amsterdam.
- [90] O'Hayre, R. P., Cha, S.-W., Colella, W., and Prinz, F. B., 2006, *Fuel cell fundamentals*, John Wiley & Sons New York.
- [91] Lucas, K., 2008, *Thermodynamik*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg.
- [92] Polifke, W., and Kopitz, J., 2009, *Wärmeübertragung : Grundlagen, analytische und numerische Methoden*, Pearson Studium, München.
- [93] Baehr, H. D., and Stephan, K., 1998, *Wärme- und Stoffübertragung*, Springer, Berlin.
- [94] Hrsg.: Verein Deutscher Ingenieure, 2006, *VDI-Wärmeatlas*, 10., bearb. u.erw. Aufl., Springer, Berlin.
- [95] Bendzulla, A., 2010, *Von der Komponente zum Stack : Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse*, Schriften des Forschungszentrums Jülich. Reihe Energie und Umwelt Jülich.
- [96] Produktinformation: BASF, "Celtec® P1000 MEA", Web Page, 02.08.2012 [http://www.fuel-cell.basf.com/ca/internet/Fuel\\_Cell/en\\_GB/content/Microsite/Fuel\\_Cell/Products/Celtec-P\\_1000](http://www.fuel-cell.basf.com/ca/internet/Fuel_Cell/en_GB/content/Microsite/Fuel_Cell/Products/Celtec-P_1000).
- [97] Produktinformation: EISENHUTH, "SIGRACET Bipolarplatten BBP 4", Web Page, 05.06.2013 <http://www.eisenhuth.de/pages/frameset.html>.
- [98] Christen, D., 2005, "Wärmeübertragung," *Praxiswissen der chemischen Verfahrenstechnik*, Springer Berlin Heidelberg, pp. 231-303.
- [99] Produktinformation: Thermacore, Inc., "Fuel Cell Cooling Solutions", Web Page, 05.06.2013 <http://www.thermacore.com/applications/fuel-cells.aspx>.
- [100] Groll, M., and Zimmermann, P., 1971, "Das stationäre und instationäre Betriebsverhalten von Wärmerohren," *Heat and Mass Transfer*, 4(1), pp. 39-47.
- [101] Faghri, A., 1995, *Heat pipe science and technology*, Taylor & Francis, Bristol, USA.

- [102] Produktinformation: Hydrogenics, "Hydrogenics Teststand G 9205", Web Page, 05.06.2013 [http://www.greenlightinnovation.com/fuel\\_cell/index.php](http://www.greenlightinnovation.com/fuel_cell/index.php).
- [103] Produktinformation: KEITHLEY, "Datalogging System 2701", Web Page, 05.06.2013 <http://www.keithley.de/products/switch/dmmswitch/?mn=2701E>.
- [104] Produktinformation: TestPoint v7®, "Software for designing test and measurement applications", Web Page, 05.06.2013 <http://www.mccdaq.com/testpoint.aspx>.
- [105] Ali, S. T., Lebak, J., Nielsen, L. P., Mathiasen, C., Møller, P., and Kær, S. K., 2010, "Thin film thermocouples for in situ membrane electrode assembly temperature measurements in a polybenzimidazole-based high temperature proton exchange membrane unit cell," *J. Power Sources*, 195(15), pp. 4835-4841.
- [106] Siegel, C., Bandlamudi, G., and Heinzl, A., 2011, "Solid-phase temperature measurements in a HTPPEM fuel cell," *Int. J. Hydrogen Energy*, 36(20), pp. 12977-12990.
- [107] Lebak, J., Ali, S. T., Møller, P., Mathiasen, C., Nielsen, L. P., and Kær, S. K., 2010, "Quantification of in situ temperature measurements on a PBI-based high temperature PEMFC unit cell," *Int. J. Hydrogen Energy*, 35(18), pp. 9943-9953.
- [108] Kundu, S., Fowler, M., Simon, L. C., and Abouatallah, R., 2008, "Reversible and irreversible degradation in fuel cells during Open Circuit Voltage durability testing," *J. Power Sources*, 182(1), pp. 254-258.
- [109] Qi, Z., and Buelte, S., 2006, "Effect of open circuit voltage on performance and degradation of high temperature PBI-H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> fuel cells," *J. Power Sources*, 161(2), pp. 1126-1132.
- [110] Kvesić, M., Reimer, U., Froning, D., Lüke, L., Lehnert, W., and Stolten, D., 2012, "3D modeling of a 200 cm<sup>2</sup> HT-PEFC short stack," *Int. J. Hydrogen Energy*, 37(3), pp. 2430-2439.
- [111] Produktinformation: S++® Simulation Service, "Stromdichte- und Temperaturverteilungsmessplatte", Web Page, 05.06.2013 <http://www.splusplus.com/en/products.html>.
- [112] Produktinformation: SGL Group, "SIGRAFLEX® Sealing Materials Made from Flexible Graphite", Web Page, 02.08.2012 <http://www.sglgroup.com>.
- [113] Produktinformation: Winkler Thermische Silikonisolationen "Silikonschaummatten", Web Page, 05.06.2013 <http://www.winkler.eu/assets/Uploads/winkler-d-katalog-silikonisolationen-silikonschaummatten-silikonschaumformteile.pdf>.
- [114] Bernhard, F., 2003, *Technische Temperaturmessung*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg.
- [115] Kvesic, M., 2012, *Modellierung und Simulation von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen*, Forschungszentrum Jülich.
- [116] Supra, J., Janßen, H., Lehnert, W., and Stolten, D., 2013, "Temperature distribution in a liquid-cooled HT-PEFC stack," *Int. J. Hydrogen Energy*, 38(4), pp. 1943-1951.
- [117] Böckh, P. v., 2006, *Wärmeübertragung : Grundlagen und Praxis*, Springer, Berlin.

- [118] Produktinformation: Boedeker Plastics, "Celazole® PolyBenzimidazole Specifications ", Web Page, 02.08.2012 <http://www.boedeker.com/celazole.htm>.
- [119] Produktinformation: Toray Industries, "Toray Carbon Paper", Web Page, 05.06.2013 <http://www.torayca.com/en/index.html>.
- [120] Produktinformation: Goodfellow, "Polybenzimidazole (PBI)", Web Page, 26.06.2013 <http://www.goodfellow.com/E/Polybenzimidazole.html>.
- [121] Supra, J., Janßen, H., Lehnert, W., and Stolten, D., 2013, "Investigation of a Heat Pipe Supported External Cooling System for HT-PEFC Stacks," *Journal of Fuel Cell Science and Technology*(DOI: 10.1115/1.4025052).
- [122] Produktinformation: Quick-Ohm Küpper & Co. GmbH, "Heatpipes", Web page, 14.02.2012 <http://www.quick-cool-shop.de/mesh-heatpipes/>.
- [123] Thyrum, G., and Cruse, E., 2001, "Heat Pipe Simulation, a simplified technique for modelling heat pipe assisted heat sinks," *Advanced Packaging Magazin*, 10(12), pp. 23 - 27.
- [124] Produktinformation: ebmpapst, "DC-Axiallüfter 3212 JH4", Web Page, 22.04.2013 [http://www.ebmpapst.com/de/products/compact-fans/axial-compact-fans/axial\\_compact\\_fans\\_detail.php?plD=111790](http://www.ebmpapst.com/de/products/compact-fans/axial-compact-fans/axial_compact_fans_detail.php?plD=111790).
- [125] Produktinformation: HS Heizelemente GmbH, "Hochleistungsheizpatrone S/HS", Web Page, 05.06.2013 [http://www.hs-heizelemente.de/produkte/p1/patrone5.php?p\\_ID=5&language=de](http://www.hs-heizelemente.de/produkte/p1/patrone5.php?p_ID=5&language=de).
- [126] Krekel, D., 2013, Auslegung einer Wasserkühlung für einen Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel, Masterarbeit am Institut für Energie und Klimaforschung, IEK-3: Elektrochemische Verfahrenstechnik, Forschungszentrum Jülich/ Ruhruniversität Bochum.
- [127] Baehr, H. D., and Stephan, K., 2006, *Wärme- und Stoffübertragung*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg.
- [128] Stephan, P., Schaber, K., Stephan, K., and Mayinger, F., 2009, *Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendungen; Band 1: Einstoffsysteme*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg.
- [129] Garimella, S. V., and Harirchian, T., "Boiling heat transfer and flow regimes in microchannels - a comprehensive understanding," *Proc. Thermal Investigations of ICs and Systems*, 2009. THERMINIC 2009. 15th International Workshop on, pp. 101-112.
- [130] Harirchian, T., and Garimella, S. V., 2010, "A comprehensive flow regime map for microchannel flow boiling with quantitative transition criteria," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 53(13–14), pp. 2694-2702.
- [131] Bertsch, S. S., Groll, E. A., and Garimella, S. V., 2008, "Review and Comparative Analysis of Studies on Saturated Flow Boiling in Small Channels," *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering*, 12(3), pp. 187-227.
- [132] Zhang, W., Hibiki, T., and Mishima, K., 2004, "Correlation for flow boiling heat transfer in mini-channels," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47(26), pp. 5749-5763.

- [133] Chen, J. C., 1966, "Correlation for Boiling Heat Transfer to Saturated Fluids in Convective Flow," *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, 5(3), pp. 322-329.
- [134] Bundeskanzleramt: Rechtsinformationssystem, "Gesamte Rechtsvorschrift für Druckgeräteverordnung", Web Page, 26.04.2013  
<http://www.ris.bka.gv.at/GeltendeFassung.wxe?Abfrage=Bundesnormen&Gesetzesnummer=20000216>.
- [135] Peters, R., Deja, R., Blum, L., Pennanen, J., Kiviaho, J., and Hakala, T., 2013, "Analysis of solid oxide fuel cell system concepts with anode recycling," *Int. J. Hydrogen Energy*, 38(16), pp. 6809-6820.
- [136] Zangemeister, C., 1976, *Nutzwertanalyse in der Systemtechnik: eine Methodik zur multidimensionalen Bewertung und Auswahl von Projektalternativen*. 4. AUFL, Wittemann, Muenchen.
- [137] Keeney, R. L., Raiffa, H., and Rajala, D. W., 1979, "Decisions with Multiple Objectives: Preferences and Value Trade-Offs," *Systems, Man and Cybernetics, IEEE Transactions on*, 9(7), pp. 403-403.
- [138] Dunn, P., and Reay, D. A., 1978, *Heat pipes*, Pergamon Press, Ltd., New York, NY.
- [139] Reay, D. A., Kew, P. A., and Dunn, P. D., 2006, *Heat pipes*, BH, Amsterdam; London.
- [140] Doering, J., 2013, *Experimentelle Untersuchung von Luft- und Ölkühlkonzepten für einen Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel*, Bachelorarbeit am Institut für Energie und Klimaforschung, IEK-3: Elektrochemische Verfahrenstechnik, Forschungszentrum Jülich / Fachhochschule Flensburg.
- [141] Gebhardt Ventilatoren, "Energieeffizienz von Ventilatoren im Klimagerät", Präsentation, 02.07.2013 [http://www.downloads.fgk.de/131\\_14\\_ISH2007\\_Anschuetz.pdf](http://www.downloads.fgk.de/131_14_ISH2007_Anschuetz.pdf).
- [142] Bergles, A. E., Collier, J. G., Delhay, J. M., Hewitt, G. F., and Mayinger, F., 1981, *Two Phase Flow and Heat Transfer in the Power and Process Industries*, Hemisphere Publ., Washington D.C.
- [143] Thome, J. R., 2010, *Engineering Data Book III*, Wolverine Tube Inc., Lausanne.
- [144] Bankston, J. D., Baker, F. E., and Center, S. R. A., 1994, *Selecting the Proper Pump*, Southern Regional Aquaculture Center.
- [145] Produktinformation: IWAKI, "Direct drive pumps RD series", Web Page, 30.07.2013  
[http://www.iwaki.de/produkte/dbpics/PDF/RD\\_%28CAT-W\\_0080-05%29.pdf](http://www.iwaki.de/produkte/dbpics/PDF/RD_%28CAT-W_0080-05%29.pdf).
- [146] Li, X., and Sabir, I., 2005, "Review of bipolar plates in PEM fuel cells: Flow-field designs," *Int. J. Hydrogen Energy*, 30(4), pp. 359-371.
- [147] Koh, J., 2003, "Pressure and flow distribution in internal gas manifolds of a fuel-cell stack," *J. Power Sources*, 115(1), pp. 54-65.
- [148] White, F. M., *Fluid mechanics* / Frank M. White, McGraw-Hill, New York, NY.

[149] Wüster, T., 2005, Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels der 5 kW Klasse, Schriften des Forschungszentrums Jülich. Reihe Energietechnik, Jülich.



## Nomenklatur

### Abkürzungen

BTL	Biogas To Liquid
CAD	Computer-Aided Design
CFD	Computational Fluid Dynamics
DMFC	Direct Methanol Fuel Cell
GDL	Gas Diffusion Layer
HT-PEFC	High-Temperatur Polymerelectrolyte Fuel Cell
LT-PEFC	Low-Temperatur Polymerelectrolyte Fuel Cell
MEA	Membrane Electrode Assembly
PBI	Phenylbenzimidazole
PGS	Pyrolytic Graphite Sheet

### Indizes

0	Bezugszustand
1	Zustand
2	Zustand
a	aktive Fläche
a	außen
aus	austretend
e	extern
e	Endplatte
eff	effektive
ein	eintretend
el	elektrische
fk	Freie Konvektion
g	gasförmig
h	hydraulisch
i	Komponente
k	Kathode
kond	Kondensation
l	flüssig
n	Norm
R	Reaktion
st	Strahlung
th	thermisch
u	untere
verd	Verdampfung
w	Wand
WT	Wärmeträgerflüssigkeit

**Lateinische Formelzeichen**

$\dot{M}$	Massenstromdichte	$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$\dot{Q}$	Wärmestrom	W
$\dot{m}$	Massenstrom	$\text{kg s}^{-1}$
$\dot{V}$	Volumenstrom	$\text{L min}^{-1}$
$\Delta G$	Gibbsche freie Enthalpie	$\text{J mol}^{-1}$
$\Delta H$	Reaktionsenthalpie	$\text{J mol}^{-1}$
$\Delta T$	Temperaturdifferenz	K
$A$	Fläche	$\text{m}^2$
$b$	Breite	mm
$c_p$	isobare Wärmekapazität	$\text{J kg}^{-1} \text{K}$
$d$	Durchmesser	mm
$d$	Dicke	mm
$E$	Spannung	V
$F$	Faraday Konstante	$\text{C mol}^{-1}$
$F$	Verstärkungsfaktor	-
$g$	Erdbeschleunigung	$\text{m s}^{-2}$
$h$	Höhe	mm
$h$	spezifische Enthalpie	$\text{J kg}^{-1}$
$I$	Stromstärke	A
$j$	Stromdichte	$\text{mA cm}^{-2}$
$l$	Länge	mm
$M$	Molare Masse	$\text{kg mol}^{-1}$
$m$	Masse	kg
$M$	Merit Number (spezifische Leistungsgröße)	$\text{kW cm}^{-2}$
$n$	Stoffmenge	mol
$N$	Anzahl	-
$p$	Druck	bar
$P$	Leistung	W
$Q$	Ladung	C
$R$	allgemeine Gaskonstante	$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
$R$	Wärmewiderstand	$\text{K}^{-1}$
$r$	Rand	mm
$s$	Dicke	mm
$S$	Abschwächungsfaktor	-
$T$	Temperatur	$^{\circ}\text{C}$
$t$	Zeit	s
$t$	Tiefe	mm
$z$	Ladungszahl	-

### Griechische Formelzeichen

$\alpha$	Wärmeübergangskoeffizient	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
$\beta$	Wärmeausdehnungskoeffizient	$\text{K}^{-1}$
$\varepsilon$	Emissionsverhältnis	-
$\eta$	dynamische Viskosität	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
$\vartheta$	Temperaturdifferenz zum Bezugspunkt 0 °C	°C
$\lambda$	Stöchiometrie	-
$\lambda$	Wärmeleitfähigkeit	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
$\nu$	Kinematische Viskosität	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$\rho$	Dichte	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma$	Stefan-Boltzmann-Konstante	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-4}$
$\sigma$	Druckfestigkeit	$\text{N mm}^{-2}$
$x$	Anteil	-
$\dot{x}$	Strömungsdampfgehalt	-

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Kombination der Brennstoffzelle mit dem Brenngaserzeugungssystem und potentielle Anwendungen.....	2
Abbildung 2-1: Übersicht der Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks .....	6
Abbildung 2-2: In die Stegstruktur der Bipolarplatten integrierte Heatpipes [82, 83] (links) und in die Bipolarplatte integrierte flache Heatpipe [82, 84] (rechts).....	10
Abbildung 2-3: In die Bipolarplatte integrierte Heatpipe aus Silikon [86].....	10
Abbildung 3-1: Wärmetransportmechanismen in der Brennstoffzelle .....	17
Abbildung 3-2: Experimentell ermittelte Strom/Spannungs- und Strom/Leistungs-Kennlinie eines 5-zelligen Stack mit den Randbedingungen aus Tabelle 3-1.....	20
Abbildung 3-3: Bilanzgrenze für ein HT-PEFC-Stackmodell.....	21
Abbildung 3-4: Mit der Energiebilanzgleichung berechneter abzuführender Wärmestrom für einen Stack mit 5 Zellen, adiabaten Randbedingungen und synthetischem Reformatbetrieb, Betriebsbedingungen entsprechend Tabelle 3-1.....	22
Abbildung 3-5: Mit Hilfe des Kühlsystems abzuführende Wärmeströme.....	27
Abbildung 3-6: Prinzipieller Aufbau einer Heatpipe .....	29
Abbildung 3-7: Thermodynamischer Kreislauf einer Heatpipe, nach [101, p. 10].....	29
Abbildung 3-8: Leistungsgrenzen der Heatpipe [94, p. MI9] .....	30
Abbildung 4-1: Positionierung der Temperaturmessung.....	34
Abbildung 5-1: CAD-Aufbauzeichnung des HT-PEFC-Stacks mit integrierter Wärmeträgerflüssigkeitskühlung .....	36
Abbildung 5-2: Positionierung der Thermoelemente im HT-PEFC-Stack.....	37
Abbildung 5-3: Polarisationskurve, Stromdichte/Leistungs-Kennlinie und berechneter abzuführender Wärmestrom bei $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$ .....	38
Abbildung 5-4: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$ .....	39
Abbildung 5-5: Vertikal in der Temperaturmessplatte gemessene Temperaturverteilung bei $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$ .....	40
Abbildung 5-6: Berechnete und gemessene ( $T_1 - T_{11}$ ) mittlere Stacktemperatur bei $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$ .....	41
Abbildung 5-7: Einfluss des Wärmeträgerflüssigkeitsvolumenstroms auf die gemessene Stacktemperatur bei konstanter $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ im Reformatbetrieb ( $\lambda_{Ref/Luft}=2/2$ ) im Vergleich mit berechneten Werten (durgezogene Linie).....	43
Abbildung 5-8: Gemessener (Punkte) und berechneter Einfluss (durchgezogene Linie) der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur auf die mittlere Stacktemperatur bei $V_{WT,ein}=4\text{ L min}^{-1}$ im Reformatbetrieb sowie $T_{min}$ und $T_{max}$ für $T_{ein}=160\text{ °C}$ .....	45

Abbildung 5-9: Vergleich geregelte und ungeregelte Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen .....	47
Abbildung 5-10: Abstrahierung der Brennstoffzelle durch ebene Platten; links: Wärmedurchgang durch eine Platte; mittig: Wärmedurchgang durch mehrere ebene Platten; rechts Wärmedurchgang bei einem Brennstoffzellenmodell .....	49
Abbildung 5-11: Stackmodell zur Berechnung der Temperaturdifferenz in der Zelle .....	50
Abbildung 5-12: Stackmodell zur Berechnung der maximalen Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle bei einer Kühlung von nur jeder n-ten Zelle .....	51
Abbildung 5-13: Maximale Temperaturdifferenz im Stack für drei Betriebspunkte .....	53
Abbildung 5-14: Anordnung der Thermoelemente sowie die Anordnung der in den Kathodenplatten integrierten Kanalstrukturen .....	54
Abbildung 5-15: Gemessene Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$ .....	55
Abbildung 5-16: Einfluss der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur auf die mittlere Stacktemperatur bei $V_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$ und $T_{min}$ und $T_{max}$ für $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ .....	56
Abbildung 5-17: Einfluss der Regelung der Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen auf den Temperaturverlauf; oben: $T_{WT,ein}=160\text{ °C}$ und Volumenstrom geregelt; unten $V_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$ und Eintrittstemperatur geregelt .....	57
Abbildung 5-18: CFD-Modellansatz einer Heatpipe unterstützten externen Kühlung .....	60
Abbildung 5-19: Simulierte Temperaturverteilung des HT-PEFC-Modells .....	60
Abbildung 5-20: Möglichkeiten zur Oberflächenvergrößerung der Heatpipes .....	61
Abbildung 5-21: Temperaturverteilung bei einer simulierten Wärmeleistung von 778 W (bei $500\text{ mA cm}^{-2}$ ) und $T_{WT,ein}=150\text{ °C}$ ; links: zusätzliche Kühlkörper, rechts: Anzahl und Länge der Heatpipes erhöht .....	62
Abbildung 5-22: Simulierte Temperaturverteilung $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=2\text{ L min}^{-1}$ ....	63
Abbildung 5-23: Simulierte Temperaturverteilungen in den Betriebspunkten 1,2,4,5 bei angepasster $T_{WT,ein}$ und $V_{WT,ein}$ .....	63
Abbildung 5-24: Flächengemittelte MEA-Temperaturen für verschiedene konstante Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen .....	64
Abbildung 5-25: Versuchsaufbau zur Verifizierung der CFD-Simulationen .....	65
Abbildung 5-26: Vergleich der Simulation mit dem Vorversuch bei Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von $T_{WT,ein}=100\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$ ....	66
Abbildung 5-27: CAD-Aufbauzeichnung des Heatpipe-unterstützten extern gekühlten HT-PEFC-Stacks .....	67
Abbildung 5-28: Anordnung der horizontal integrierten Thermoelemente zur Bestimmung der Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle .....	68

Abbildung 5-29: U-j-Kennlinie sowie Stackleistung und abzuführender Wärmestrom für einen Stackbetrieb mit konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$ .....	69
Abbildung 5-30: Vertikale Temperaturverteilung für einen Stackbetrieb mit konstanten Eintrittsbedingungen von $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$ .....	69
Abbildung 5-31: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle für die Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen von $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$ ....	70
Abbildung 5-32: Gemittelte Stacktemperaturen (T1-T14) bei konstanten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen.....	71
Abbildung 5-33: Gemittelte Stacktemperaturen (T1-T14) bei geregelten Wärmeträgerflüssigkeitseintrittsbedingungen.....	72
Abbildung 5-34: Berechneter abführbarer Wärmestrom in Abhängigkeit vom Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit für $T_{WT,ein}=120\text{ °C}$ .....	73
Abbildung 5-35: Abzuführender Wärmestrom und el. Stackleistung.....	73
Abbildung 5-36: Berechneter abführbarer Wärmestrom in Abhängigkeit von der Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit für $V_{WT,ein}=6\text{ L min}^{-1}$ .....	74
Abbildung 6-1: Variationsmöglichkeiten der Geometrieparameter.....	78
Abbildung 6-2: Modellvariationen bezüglich der Wärmeabfuhr.....	79
Abbildung 6-3: Einfluss von verschiedenen thermischen Isolationsdicken auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom eines Stacks mit 5 Zellen und einer aktiven MEA-Fläche von $11 \times 18,2\text{ cm}^2$ .....	81
Abbildung 6-4: Einfluss der Zellenzahl auf den abzuführenden Wärmestrom eines thermisch nicht isolierten Stacks mit einer aktiven MEA-Fläche von $11 \times 18,2\text{ cm}^2$ .....	82
Abbildung 6-5: Einfluss der aktiven MEA-Fläche auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom .....	83
Abbildung 6-6: Einfluss des Seitenverhältnisses auf den aktiv abzuführenden Wärmestrom .....	84
Abbildung 6-7: CFD-Stackmodell zur Simulation der lokalen Temperaturverteilung bei einer rein passiven Kühlung über die Oberfläche.....	85
Abbildung 6-8: Simulierte Temperaturverteilung auf den 10 MEAs des CFD-Modells für den Betriebspunkt 1 ( $100\text{ mA cm}^{-2}$ ).....	86
Abbildung 6-9: Abzuführender Wärmestrom für einen 10-zelligen, thermisch isolierten HT-PEFC-Stack im Reformatbetrieb.....	88
Abbildung 6-10: Abgeschätzter benötigter Normluftvolumenstrom zur vollständigen Wärmeabfuhr.....	89
Abbildung 6-11: Gemessene Lüfterkennlinien und berechneter Druckverlust in der Kanalstruktur im Vergleich mit der vom Hersteller gegebenen Lüfterkennlinie bei Vollast [124] .....	90

Abbildung 6-12: CAD-Aufbauzeichnung des luftgekühlten HT-PEFC-Stacks.....	92
Abbildung 6-13: Positionierung der Thermoelemente im Stack.....	92
Abbildung 6-14: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei einem konstanten Normluftvolumenstrom von $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ .....	93
Abbildung 6-15: Temperaturverteilung gemessen in der Temperaturmessplatte bei einem konstanten Kühlluft-Normvolumenstrom von $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ .....	94
Abbildung 6-16: Strom/Spannungs-Kennlinie und Stackleistung bei einem konstanten Kühlluft-Normvolumenstrom von $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ .....	95
Abbildung 6-17: Strom/Spannungs-Kennlinie, Stackleistung, Leistungsaufnahme der Lüfter bei geregelter Kühlluft-Normvolumenstrom zwischen 0 und $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ .....	95
Abbildung 6-18: Vergleich der mittleren Stacktemperaturen bei geregelter und ungeregelter Kühlluftzufuhr .....	96
Abbildung 6-19: Rechnerisch bestimmter Vergleich der Stacktemperatur für die Regelung der Eintrittstemperatur und des Volumenstroms der Kühlluft .....	97
Abbildung 6-20: Zellspannungs- und Temperaturverlauf im Dauerversuch über 644 h; Reformatbetrieb bei einer Stromdichte von $400 \text{ mA cm}^{-2}$ , $\lambda_{\text{Ref,Luft}}=2/2$ .....	98
Abbildung 7-1: Modellbildung für die Berechnung einer Wasserkühlung .....	104
Abbildung 7-2: Berechnete mittlere MEA-Temperatur bei einer Wassereintrittstemperatur von $155 \text{ }^{\circ}\text{C}$ .....	106
Abbildung 7-3: Berechnete MEA-Temperaturverteilung über der Kanallänge bei einer Wassereintrittstemperatur von $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$ und einem Druck von 6,18 bar.....	108
Abbildung 7-4: Berechnete mittlere MEA-Temperatur über der Stromdichte für eine Wassereintrittstemperatur von $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$ und einem Druck von 6,18 bar.....	109
Abbildung 8-1: Mittlere Stacktemperatur bei unregelmäßigen Eintrittsbedingungen ( $T_{\text{ein}}$ und $V_{\text{ein}}$ konstant) der Wärmeträgermedien für Betriebsbedingungen (siehe Tabelle 8-2) die einen Stackbetrieb im optimalen Betriebstemperaturbereich in einem möglichst großen Stromdichtebereich gewährleisten.....	116
Abbildung 8-2: Mittlere Stacktemperatur über der Stromdichte bei geregelten Eintrittsbedingungen der Wärmeträgermedien .....	119
Abbildung 8-3: Vergleich der parasitären Leistungsaufnahme der Luftkühlung (gemessenen Werte) und der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung (abgeschätzte Werte) anhand eines 10-zelligen Stacks mit interner Kühlung von jeder Zelle.....	121
Abbildung 8-4: Eindringene Wärmeträgerflüssigkeit in MEA-Bereiche aufgrund von Dichtungsversagen (rot markiert) .....	123
Abbildung 9-1: Stackaufbau in Modulbauweise (links) und gekapselte Kühlzellen aus Edelstahl (rechts) .....	125
Abbildung 9-2: Abstrahierung zur Berechnung der Temperaturdifferenz .....	126

Abbildung 9-3: Mit Hilfe der Energiebilanz berechneter abzuführender Wärmestrom eines Moduls und berechnete Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle: Reformatbetrieb, $A_{aktiv}=320 \text{ cm}^2$ , vollständige thermische isolation, 12 Zellen .....	127
Abbildung 9-4: Experimenteller Versuchsaufbau des Stacks (links) und eines Moduls (rechts) mit gekapselten Kühlzellen .....	128
Abbildung 9-5: Positionierung der Thermoelemente .....	129
Abbildung 9-6: Leistung und Strom/Spannungs-Kennlinie für ein Modul bei $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$ .....	129
Abbildung 9-7: Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$ und $V_{WT,ein}=6 \text{ L min}^{-1}$ .....	130
Abbildung 9-8: Vergleich zwischen Zellspannung und Temperaturverteilung bei einer Stromdichte von $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .....	131
Abbildung 9-9: Vergleich zwischen den Betriebspunkten bei $300$ und $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .....	132
Abbildung 9-10: Vergleich von Reformat- und Wasserstoffbetrieb bei einer Stromdichte von $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .....	133
Abbildung 9-11: Platzierung der Thermoelemente (links) und erreichte Stackleistung (rechts) gemessen im Reformatbetrieb, $T_{WT,ein}=160 \text{ °C}$ , $V_{WT,ein}=18 \text{ L min}^{-1}$ , 70 Zellen, $\lambda_{Rel/Luf}=2/2$ .....	134
Abbildung 9-12: Temperaturmessungen in den Modulen des Stacks .....	134
Abbildung 10-1: Einfluss des Wärmeträgermediums und des Kühlsystems auf die Temperaturverteilung in der MEA-Ebene bei einer Stromdichte von $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .....	138
Abbildung 10-2: Einfluss der verschiedenen Kühlkonzepte auf die Temperaturverteilung von Zelle zu Zelle bei einer Stromdichte von $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .....	140
Abbildung 10-3: Prinzip des Temperaturverlaufes in Abhängigkeit vom Massenstrom über dem abzuführenden Wärmestrom .....	141
Abbildung 10-4: Prinzip des Temperaturverlaufes in Abhängigkeit von der Eintrittstemperatur des Wärmeträgermediums .....	142



## Tabellenverzeichnis

Tabelle 3-1: Kennwerte des im Forschungszentrum Jülich entwickelten HT-PEFC-Stackkonzeptes [95] .....	19
Tabelle 3-2 Berechnung der freien Konvektion.....	25
Tabelle 3-3: Berechnung der Strahlung .....	26
Tabelle 5-1: Kenndaten des untersuchten HT-PEFC-Stacks .....	36
Tabelle 5-2: Variation der Einflussparameter auf die Stacktemperatur .....	42
Tabelle 5-3: Werte zur Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit.....	52
Tabelle 5-4: Abzuführender Wärmestrom pro Zelle für 3 Betriebspunkte.....	52
Tabelle 5-5: Aufbau und Betriebsbedingungen des zur Validierung untersuchten HT-PEFC-Stacks.....	54
Tabelle 5-6: Randbedingungen zur Stackauslegung der externen Kühlung.....	59
Tabelle 5-7: Simulierte Betriebspunkte und der damit verbundene abzuführende Wärmestrom.....	59
Tabelle 5-8: Stackkomponenten und Betriebsbedingungen für die experimentellen Untersuchungen.....	67
Tabelle 6-1: Variationen der Einflussparameter für das HT-PEFC Modell .....	77
Tabelle 6-2: Randbedingungen bei Variation der Isolationsdicke.....	80
Tabelle 6-3: Randbedingungen bei Variation der Zellenzahl.....	82
Tabelle 6-4: Randbedingungen bei Variation der MEA-Fläche .....	83
Tabelle 6-5: Randbedingungen bei Variation des Seitenverhältnisses.....	84
Tabelle 6-6: Simulierte Betriebspunkte des CFD-Modells.....	86
Tabelle 6-7: Festgelegte Kühlparameter für den hier untersuchten Stack.....	88
Tabelle 6-8: Datenblatt der ausgewählten Axiallüfter [124] .....	90
Tabelle 6-9: Versuchsaufbau und Betriebsbedingungen für die Luftkühlungsuntersuchung .....	91
Tabelle 6-10: Randbedingungen zur Messung von Temperaturverteilungen und Strom/Spannungs-Kennlinien .....	93
Tabelle 6-11: Festgelegte Randbedingungen zur Berechnung des notwendigen Kathodenluftmengenstroms für die Stackkühlung.....	100
Tabelle 6-12: Zur Kühlung berechneter notwendiger Luftmassenstrom und Kathodenluftstöchiometrie .....	101
Tabelle 8-1: Kenndaten verschiedener Wärmeträgermedien.....	113
Tabelle 8-2: Eintrittsbedingungen für das Wärmeträgermedium sowie die Untersuchungsmethode .....	115

Tabelle 8-3: Mit dem jeweiligen Kühlkonzept im optimalen Betriebstemperaturbereich ermöglichter Stromdichtebereich bei unregelmäßigen Eintrittsbedingungen .....	117
Tabelle 8-4: Eintrittsbedingungen des Wärmeträgermediums .....	118
Tabelle 8-5: Nutzwertanalyse zur Beurteilung der Systemanforderungen an das Kühlkonzept.....	120
Tabelle 9-1: Übersicht der experimentellen Betriebsbedingungen.....	128
Tabelle 10-1: Wesentliche Kennwerte der Untersuchungen aus Kapitel 5.3, 5.2 und 1..	143

## Anhang

### Anhang zu Kapitel 3

#### Berechnung des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf das Wärmeträgermedium für den Stack aus Tabelle 3-1.

Die Randbedingungen der Berechnung sind in Tabelle A 1 aufgeführt.

**Tabelle A 1: Randbedingungen für die Berechnung des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf das Wärmeträgermedium für den Stack aus Tabelle 3-1**

	Wärmeträger- flüssigkeit (160 °C)	Luft ( 100 °C)
Wärmetransportkapazität / $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	2250	1011,5
Dichte / $\text{kg m}^{-3}$	901	0,9333
dynamische Viskosität / $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	1900	0,000028896
Wärmeleitfähigkeit / $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	0,158	0,03162
Prandtlzahl / -	27,1	0,7004
Kanalquerschnitt / $\text{m}^2$	0,000003	0,000003
Kanallänge / m	0,11	0,11
hydraulischer Durchmesser / m	0,001714286	0,001714286
Kanaloberfläche / $\text{m}^2$	0,00077	0,00077
Temperaturdifferenz Kanalwand zur Strömung / K	15	70

Für Wärmeträgerflüssigkeit sind die Ergebnisse der Berechnung des maximal zu übertragenden Wärmestroms in Tabelle A 2 aufgelistet.

**Tabelle A 2: Berechnung des maximal zu übertragenden Wärmestroms bei der Verwendung von Wärmeträgerflüssigkeit**

Strom- dichte / $\text{mA cm}^{-2}$	Abzu- führender Wärme- strom / W	notwendiger Massenstrom pro Kanal / $\text{kg s}^{-1}$	Re	Nu	Wärme- übergangs- koeffizient / $\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$	Übertragbarer Wärmestrom / W
0	0,0	0,000000	0,0	3,7	337,3	701,3
50	26,5	0,000010	3,0	3,7	337,5	701,7
100	57,3	0,000023	6,5	3,7	337,9	702,4
150	91,2	0,000036	10,4	3,7	338,4	703,6
200	128,3	0,000051	14,6	3,7	339,1	705,0
250	166,8	0,000066	19,0	3,7	340,0	706,8
300	207,3	0,000082	23,6	3,7	341,0	708,9
350	249,8	0,000099	28,5	3,7	342,2	711,4
400	294,3	0,000116	33,6	3,7	343,5	714,1
450	340,5	0,000135	38,8	3,7	345,0	717,2
500	388,9	0,000154	44,3	3,8	346,6	720,6
550	437,8	0,000173	49,9	3,8	348,4	724,2

600	488,0	0,000193	55,6	3,8	350,2	728,1
650	539,9	0,000213	61,6	3,8	352,3	732,3
700	592,7	0,000234	67,6	3,8	354,4	736,8

Damit ergibt sich ein limitierender Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  ( $0,000173 \text{ kg s}^{-1}$ ) bei einer Stromdichte von  $700 \text{ mA cm}^{-2}$ .

Für Luft sind die Ergebnisse der Berechnung des maximal zu übertragenden Wärmestroms in Tabelle A 3 aufgelistet.

**Tabelle A 3: Berechnung des maximal zu übertragenden Wärmestroms bei der Verwendung von Luft**

Strom- dichte / $\text{mA cm}^{-2}$	Abzu- führender Wärme- strom / W	notwendiger Massenstrom pro Kanal / $\text{kg s}^{-1}$	Re	Nu	Wärme- übergangs- koeffizient / $\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$	Übertragbarer Wärmestrom / W
0	0,0	0,000000	0,0	3,7	337,3	4091,0
50	26,5	0,000001	17,7	3,7	337,4	4091,7
100	57,3	0,000002	38,3	3,7	337,5	4093,4
150	91,2	0,000003	60,9	3,7	337,7	4095,8
200	128,3	0,000004	85,7	3,7	338,0	4099,0
250	166,8	0,000006	111,5	3,7	338,3	4102,8
300	207,3	0,000007	138,5	3,7	338,7	4107,4
350	249,8	0,000008	167,0	3,7	339,1	4112,7
400	294,3	0,000010	196,7	3,7	339,6	4118,7
450	340,5	0,000012	227,6	3,7	340,2	4125,4
500	388,9	0,000013	259,9	3,7	340,8	4133,0
550	437,8	0,000015	292,6	3,7	341,5	4141,0
600	488,0	0,000016	326,2	3,7	342,2	4149,8
650	539,9	0,000018	360,9	3,7	343,0	4159,2
700	592,7	0,000020	396,2	3,7	343,8	4169,3

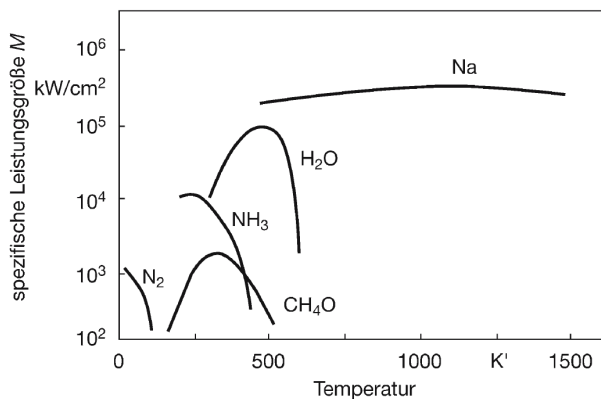
### Auswahl des Wärmeträgermediums zum Einsatz in Heatpipes

Bei der Auswahl des Wärmeträgermediums ist es wichtig, dass es eine große Verdampfungsenthalpie, eine große Wärmeleitfähigkeit, eine niedrige Viskosität, eine große Oberflächenspannung, eine gute Benetzungsfähigkeit und weder extrem hohe noch extrem niedrige Dampfdrücke aufweist [94, p. M11]. In konventionellen Heatpipes tritt der größte Druckverlust aufgrund des Flüssigkeitstransports in der Kapillarstruktur auf. Die damit assoziierten Eigenschaften können mit der spezifischen Leistungsgröße, der „merit number“  $M$ , zusammengefasst werden [138].

$$M = \frac{\sigma \cdot \rho_l \cdot h_v}{\mu_l} \quad (11-1)$$

Um den Wärmetransport zu maximieren, sollte das Arbeitsfluid verschiedene Eigenschaften aufweisen. Zum einen sollte die Oberflächenspannung ( $\sigma$ ) hoch sein, um die kapillare Förderung zu erhöhen. Zum anderen ist es notwendig, den zu fördernden Massenstrom möglichst zu minimieren. Dazu sollte das Arbeitsfluid eine hohe Verdampfungsenthalpie ( $h_v$ ), eine niedrige Viskosität ( $\mu_l$ ) und eine hohe Dichte ( $\rho_l$ ) aufweisen, was zusammen zu einem maximalen Wärmetransportvermögen führt.

In Abbildung A 1 ist die spezifische Leistungsgröße für verschiedene Wärmeträgermedien über der Temperatur aufgetragen.



**Abbildung A 1: Spezifische Leistungsgröße für verschiedene Wärmeträger [94, p. M13]**

Für den Einsatz in einer HT-PEFC eignet sich als Wärmeträgermedium am besten Wasser, welches einen einsetzbaren Temperaturbereich von 30 bis 250 °C abdeckt [101]. Neben der Auswahl des geeigneten Fluids muss auch bei der Wahl des Werkstoffs der Wand und der Kapillarstrukturen auf eine hohe Wärmeleitfähigkeit und die Verträglichkeit mit dem Wärmeträgerfluid geachtet werden. Bei einer mit Wasser gefüllten Heatpipe ist Kupfer als Werkstoff der Kapillarstrukturen und der Wand geeignet [139, pp.108ff].

## Anhang zu Kapitel 5

Vergleich der gemessenen und berechneten Temperaturdifferenzen über der aktiven Fläche eines an jeder Zelle gekühlten Stacks

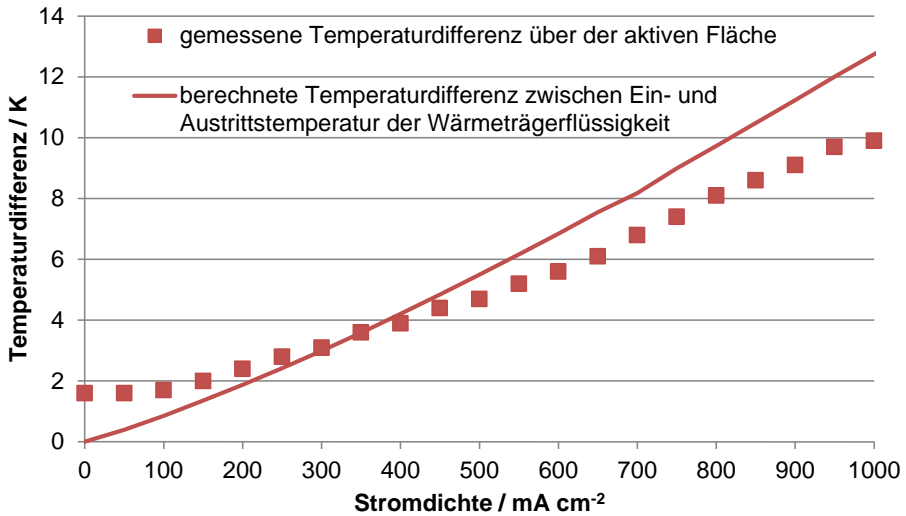


Abbildung A 2: Berechnete und gemessene Temperaturdifferenz über der aktiven Fläche bzw. zwischen Ein- und Austritt der Wärmeträgerflüssigkeit

Herleitung der Gleichung zur Berechnung der maximalen Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle nach Gleichung (5-3)

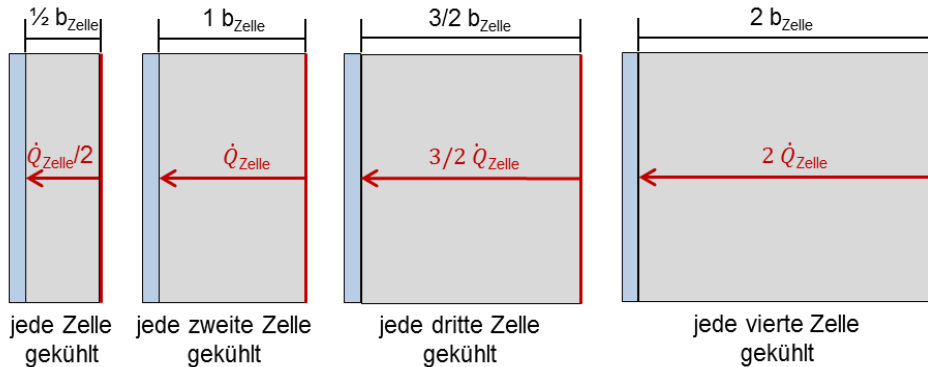
Ausgehend von der Fourier'schen Gleichung der Wärmeleitung:

$$\dot{Q} = \lambda \cdot A \frac{\partial T}{\partial x} \quad (11-2)$$

kann die Gleichung in der Differenzschreibweise nach der Temperaturdifferenz umgestellt werden:

$$\Delta T = \frac{\dot{Q} \cdot b_{\text{Zelle}}}{A \cdot \lambda_{\text{eff}}} \quad (11-3)$$

Der pro Wärmesenke abzuführende Wärmestrom und die Distanz über die die Wärmeleitung stattfinden muss ist in der folgenden Abbildung dargestellt.



Daraus ergeben sich die in der Tabelle A 4 aufgelisteten Werte.

**Tabelle A 4: pro Wärmesenke abzuführende Wärme und die Distanz über die die Wärmeleitung stattfinden**

Anzahl der pro Kühlzelle gekühlten Zellen	Distanz der Wärmeleitung	Pro Kühlzelle abzuführender Wärmestrom
1	$\frac{1}{2} b$	$\frac{1}{2} \dot{Q}$
2	$b$	$\dot{Q}$
3	$3/2 b$	$3/2 \dot{Q}$
4	$2 b$	$2 \dot{Q}$
5	$5/2 b$	$5/2 \dot{Q}$
6	$3 b$	$3 \dot{Q}$

Damit erweitert sich die Gleichung zur Berechnung der maximalen Temperaturdifferenz wie folgt:

$$\Delta T = \frac{\dot{Q} \cdot b_{\text{Zelle}}}{A \cdot \lambda_{\text{eff}}} \cdot \left( \frac{N_{\text{gek,Zellen}}}{2} \right)^2 \quad (11-4)$$

### Analytische Berechnung des Wärmeübergangs an den Heatpipes

Der Wärmeübergang lässt sich mit Hilfe der folgenden Gleichung berechnen.

$$\dot{Q} = \alpha \cdot A \cdot (\Delta T')$$

Dabei ist die angeströmte Länge  $L = \pi \cdot d/2$  und  $\lambda = 0,16$ . Für die Wärmeträgerflüssigkeit ( $V = 6 \text{ L min}^{-1}$ ) gilt  $v = 3,3 \text{ mm}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $\rho = 930 \text{ kg m}^{-3}$  womit sich eine Reynolds-Zahl  $Re = 65,2$  errechnet. Die Prandtl-Zahl beträgt  $Pr = 27,1$ . Dies führt zu einem

Wärmeübergangskoeffizienten von  $\alpha=2375,3 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ . Bei einer von Wärmeträgerflüssigkeit angeströmten Heatpipelänge von 30 mm ist somit 544 W Wärme übertragbar.

### **Einfluss der Regelung des Volumenstroms auf den zu übertragenden Wärmestrom**

**Tabelle A 5: Abführbarer Wärmestrom in Abhängigkeit vom Volumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit für eine Eintrittstemperatur von 120 °C**

Volumenstrom / $\text{L min}^{-1}$	Reynoldszahl / -	Nusseltzahl / -	Wärmeübergangskoeffizient / $\text{W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$	Übertragbarer Wärmestrom ( $T_{\text{Stack}}=160^\circ\text{C}$ ) / W	Übertragbarer Wärmestrom ( $T_{\text{Stack}}=180^\circ\text{C}$ ) / W
0	0,0	0,0	0,0	0	0
1	6,1	14,4	484,9	148	222
2	12,2	20,3	685,8	209	314
3	18,3	24,9	839,9	256	385
4	24,4	28,7	969,8	296	444
5	30,5	32,1	1084,3	331	497
6	36,6	35,2	1187,8	363	544
7	42,7	38,0	1283,0	392	588

## **Anhang zu Kapitel 6**

Teile der Messungen und Aufbereitung der Messergebnisse des Kapitel 6 wurden im Rahmen einer Bachelorarbeit im Forschungszentrum Jülich durchgeführt [140].

### **Berechnung des Druckverlustes im Stack**

**Tabelle A 6: Druckverlust im luftgekühlten Stack**

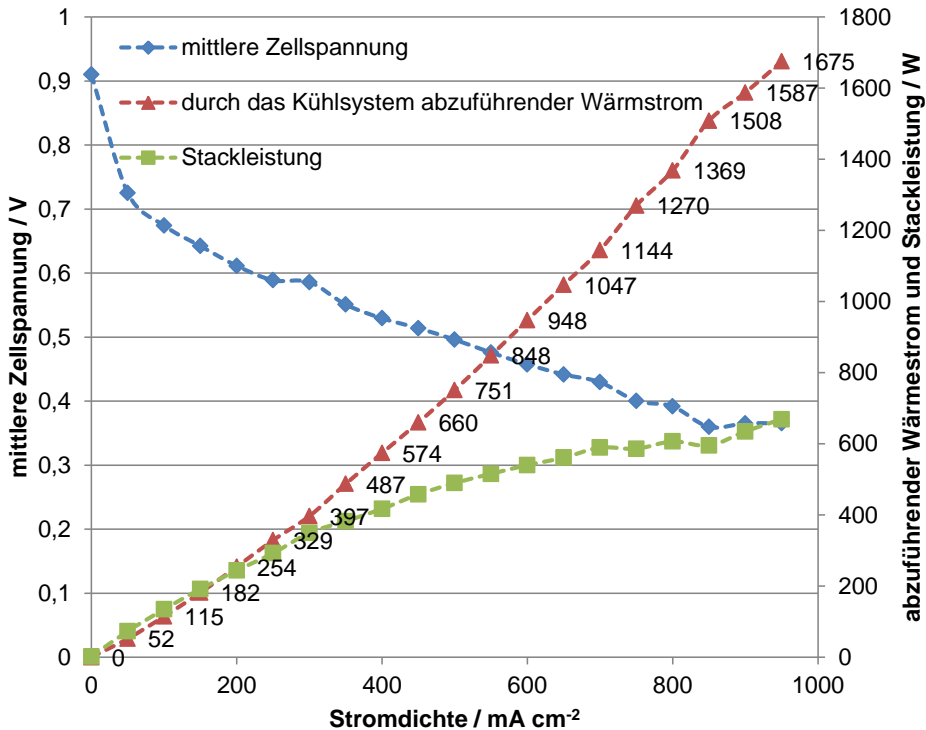
Volumenstrom / $\text{m}^3 \text{ h}^{-1}$	mittlere Geschwindigkeit / $\text{m s}^{-1}$	Reynoldszahl	Druckverlust pro Kanal / Pa
0	0	0	0
25	2,6	278,3	73,3
50	5,1	556,7	146,7
75	7,7	835,0	220,0
100	10,3	1113,3	293,3
125	12,9	1391,7	366,6
150	15,4	1670,0	440,0
175	18,0	1948,3	513,3
200	20,6	2226,6	586,6
225	23,1	2505,0	660,0
250	25,7	2783,3	733,3
275	28,3	3061,6	806,6

Kanalgeometrie entspricht den Angaben in Tabelle 3-1.



### Berechnung der mittleren Stacktemperatur bei der aktiven Luftkühlung

Mit Hilfe der Energiebilanz lässt sich der abzuführende Wärmestrom (Abbildung A 3) aus der Kennlinie (vgl. Abbildung 6-17) berechnen.



**Abbildung A 3: Durch das Kühlsystem abzuführender Wärmestrom**

Mit Hilfe von Gleichung (3-20) lässt sich die Temperaturdifferenz zwischen ein- und austretendem Volumenstrom der Luft berechnen. Die maximale Stacktemperatur wird unter Berücksichtigung des Temperaturanstiegs aufgrund des Wärmeübergangs von der Wand auf die Luft mit Gleichung (3-21) berechnet. Zur Ermittlung des Wärmeübergangskoeffizienten sind die Gleichungen (3-48), (3-49) und (3-50) zu lösen. Die Ergebnisse sind für einen konstanten Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  in Tabelle A 7 dargestellt. Die Ergebnisse der Berechnung für eine konstante Eintrittstemperatur ( $T_{\text{ein}} = T_{\text{Umgebung}} = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ) sind in Tabelle A 8 aufgelistet.

**Tabelle A 7: Berechnung der Stacktemperatur bei geregelten Eintrittstemperaturen und konstantem Normvolumenstrom von  $100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$**

Strom- dichte / $\text{mA cm}^{-2}$	Volu- men- strom / $\text{m}^3 \text{ h}^{-1}$	Rey- nolds- zahl	Wärme- über- gangs- koeffizient / $\text{W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$	Tempe- ratur- differenz Wand-Luft / K	Eintritts- tempe- ratur Luft / $^{\circ}\text{C}$	Temperatur- differenz Luft (aus- ein) / K	Temperatur im Stack / $^{\circ}\text{C}$
0	100	1742	72,8	0,0	160	0,0	160,0
50	100	1742	72,8	2,1	160	1,8	163,9
100	100	1742	72,8	4,5	160	4,0	168,6
150	100	1742	72,8	7,2	160	6,4	173,6
200	100	1742	72,8	10,1	160	8,9	179,0
250	100	1742	72,8	13,1	140	11,6	164,6
300	100	1742	72,8	15,7	140	13,9	169,7
350	100	1742	72,8	19,3	140	17,1	176,5
400	100	1742	72,8	22,8	120	20,2	162,9
450	100	1742	72,8	26,2	120	23,2	169,4
500	100	1742	72,8	29,8	120	26,4	176,2
550	100	1742	72,8	33,6	100	29,8	163,5
600	100	1742	72,8	37,6	100	33,3	170,9
650	100	1742	72,8	41,5	100	36,8	178,3
700	100	1742	72,8	45,4	80	40,2	165,6
750	100	1742	72,8	50,3	80	44,6	175,0
800	100	1742	72,8	54,3	60	48,1	162,4
850	100	1742	72,8	59,8	60	53,0	172,8
900	100	1742	72,8	62,9	60	55,8	178,7
950	100	1742	72,8	66,4	40	58,9	165,3

**Tabelle A 8: Berechnung der Stacktemperatur bei geregelter Normvolumenstrom und konstanter Eintrittstemperatur  $T_{\text{ein}} = T_{\text{Umgebung}} = 20^{\circ}\text{C}$**

Strom- dichte / $\text{mA cm}^{-2}$	Volu- men- strom / $\text{m}^3 \text{ h}^{-1}$	Rey- nolds- zahl	Wärme- über- gangs- koeffizient / $\text{W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$	Tempe- ratur- differenz Wand-Luft / K	Eintritts- tempe- ratur Luft / $^{\circ}\text{C}$	Temperatur- differenz Luft (aus- ein) / K	Temperatur im Stack / $^{\circ}\text{C}$
0	1,3	22	63,0	0,0	20	0,0	20,0
50	1,3	22	63,0	2,4	20	146,9	169,3
100	3,0	52	63,1	5,2	20	134,3	159,6
150	4,5	78	63,1	8,3	20	141,8	170,1
200	6,5	113	63,2	11,6	20	137,6	169,2
250	8,0	139	63,3	15,0	20	144,7	179,7
300	10,0	174	63,4	18,1	20	139,5	177,5
350	13,0	226	63,5	22,1	20	131,8	173,9
400	16,0	279	63,7	26,0	20	126,2	172,2

450	19,0	331	63,9	29,8	20	122,1	171,9
500	21,0	366	64,1	33,8	20	125,7	179,5
550	25,0	435	64,4	38,0	20	119,3	177,3
600	30,0	522	64,8	42,2	20	111,0	173,2
650	33,0	575	65,1	46,4	20	111,5	178,0
700	40,0	697	65,8	50,2	20	100,6	170,8
750	50,0	871	66,8	54,9	20	89,3	164,2
800	55,0	958	67,4	58,6	20	87,5	166,1
850	60,0	1045	67,9	64,1	20	88,4	172,5
900	65,0	1132	68,5	66,9	20	85,8	172,7
950	70,0	1219	69,1	70,0	20	84,1	174,1

Zur Abschätzung der Leistungsaufnahme muss der Druckverlust in der Kanalstruktur berechnet werden. Mit dem Lüfterwirkungsgrad ( $\eta_{\text{Lüfter}}=0,8$ ) und Motorwirkungsgrad ( $\eta_{\text{Motor}}=0,8$ ) lässt sich die Leistungsaufnahme berechnen [141]. Hinzu kommt die notwendige Erwärmung der einströmenden Luft. Dabei entspricht die aufzubringende Leistung der Heizpatronen dem Wärmestrom. Die Ergebnisse sind in Tabelle A 9 verglichen.

**Tabelle A 9: Vergleich der berechneten Leistungsaufnahme**

Strom- dichte / mA cm <sup>-2</sup>	T <sub>ein</sub> =geregelt; $\dot{V}_{n, \text{ein}}=100 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$			T <sub>ein</sub> =20 °C; $\dot{V}_{\text{ein}}$ =geregelt	
	Druck- verlust / Pa	Leistungs- aufnahme Lüfter / W	Leistungsaufnahme Heizpatronen / W	Druck- verlust / Pa	Leistungs- aufnahme Lüfter / W
0	459,1	19,9	3982	5,7	0,003
50	459,1	19,9	3982	5,7	0,003
100	459,1	19,9	3982	13,8	0,018
150	459,1	19,9	3982	20,7	0,040
200	459,1	19,9	3982	29,8	0,084
250	459,1	19,9	3413	36,7	0,128
300	459,1	19,9	3413	45,9	0,199
350	459,1	19,9	3413	59,7	0,337
400	459,1	19,9	2845	73,5	0,510
450	459,1	19,9	2845	87,2	0,719
500	459,1	19,9	2845	96,4	0,879
550	459,1	19,9	2276	114,8	1,246
600	459,1	19,9	2276	137,7	1,794
650	459,1	19,9	2276	151,5	2,170
700	459,1	19,9	1707	183,7	3,188
750	459,1	19,9	1707	229,6	4,982
800	459,1	19,9	1138	252,5	6,028
850	459,1	19,9	1138	275,5	7,174
900	459,1	19,9	1138	298,4	8,420
950	459,1	19,9	569	321,4	9,765

## Anhang zu Kapitel 7

### Berechnung des zweiphasigen Wärmeübergangskoeffizienten für die Wasserkühlung

Der folgende Abschnitt ist ein Auszug aus der im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Masterarbeit. Weitere Details sind in [126] zu finden.

In der Korrelation nach Zhang et al. [132] wird der Wärmeübergangskoeffizient beim „Blasensieden“ nach einer Korrelation für das „Behältersieden“ berechnet, welche auf einen modifizierten Ansatz von Forster und Zuber zurückgeht [142]:

$$\alpha_{NB} = 0,00122 \cdot \left( \frac{\lambda'^{0,79} \cdot c_p'^{0,45} \cdot \rho'^{0,49}}{\sigma^{0,5} \cdot \eta'^{0,29} \cdot \Delta h_{verd}^{0,24} \cdot \rho''^{0,24}} \right) \cdot \Delta T_{\text{über}}^{0,24} \cdot \Delta p_{\text{über}}^{0,75} \quad (11-5)$$

In Gleichung (11-5) müssen die Stoffwerte entsprechend der Sättigungstemperatur für siedende Flüssigkeit und gesättigten Dampf eingesetzt werden. Die Terme  $\Delta T_{\text{über}}$  und  $\Delta p_{\text{über}}$  entsprechen der Temperatur- bzw. Druckdifferenz zwischen dem Wert an der Heizwand und dem Sättigungswert [133]. Nach einer Empfehlung aus [127] sollte bei der Chen-Korrelation zur Verbesserung der Genauigkeit für  $\alpha_{NB}$  ein anderer Ansatz gewählt werden. Zur Auswahl stehen einige Korrelationen, die dem Kapitel 4.2.7 in [127] entnommen werden können.

Da beim „Strömungssieden“ der Temperaturgradient in der Grenzschicht größer ist als bei reinem „Behältersieden“, wird die Blasenbildung gegenüber der beim „Behältersieden“ zum Teil unterdrückt. Dieses Phänomen wird durch den „Abschwächungsfaktor“  $S$  berücksichtigt, welcher bei kleinen Massenstromdichten gegen eins und bei großem  $\dot{M}$  gegen null geht [127]. Der „Abschwächungsfaktor“ wird in der Korrelation von Zhang et al. nach Gleichung (11-6) definiert [132]. Für die Chen Korrelation wird dieser Faktor bei dem Vergleich in Kapitel 7.3 über einen Ansatz aus [127] ermittelt, welcher an dieser Stelle nicht explizit beschrieben werden soll, sondern in [127] auf Seite 551 nachgeschlagen werden kann.

$$S = \frac{1}{(1 + 2,53 \cdot 10^{-6} \cdot Re_{fl}^{1,17})} \quad (11-6)$$

Die Reynolds - Zahl der flüssigen Phase ist nach Gleichung (11-7) definiert:

$$Re_{fl} = \frac{\dot{M} \cdot (1 - \dot{x}) \cdot d_i}{\eta'} \quad (11-7)$$

Der Innendurchmesser entspricht bei einer rechteckigen Kanalgeometrie wieder dem hydraulischen Durchmesser, wobei nach [143] bei einer Zweiphasenströmung alternativ der

Äquivalentdurchmesser, welcher dem Durchmesser eines kreisrunden Rohres mit gleicher Querschnittsfläche wie beim rechteckigen Kanal entspricht, vorgeschlagen wird. Der Wärmeübergangskoeffizient des „Konvektiven Wärmeübergangs“ wird beim Ansatz von Zhang et al. für einen rechteckigen, vertikal durchströmten Kanal mit  $Re_{fl} \leq 2000$  durch Gleichung (11-8) beschrieben. Bei der Chen-Korrelation wird in [132] ein anderer Ansatz genannt.

$$\alpha_K = \frac{\lambda'}{d_h} \cdot MAX(Nu_{K,lam}, Nu_{Collier}) \quad (11-8)$$

Zur Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten muss das Maximum aus den beiden Nußelt – Zahl-Ansätzen gefunden werden. Diese sind wie folgt definiert [132]:

$$\begin{aligned} Nu_{K,lam} &= 8,235 (1 - 2,042 \cdot AR + 3,085 \cdot AR^2 - 2,4765 \cdot AR^3 + 1,058 \cdot AR^4 \\ &\quad - 0,185 \cdot AR^5) \end{aligned} \quad (11-9)$$

Gleichung (11-9) gilt für rechteckige Kanäle und beinhaltet deswegen das Seitenverhältnis  $AR$ . Die Gleichung berücksichtigt die Randbedingung einer konstanten Wärmestromdichte.

$$Nu_{Collier} = 0,17 \cdot Re_{fl}^{0,33} \cdot Pr_{fl}^{0,43} \cdot \left( \frac{Pr_{fl}}{Pr_w} \right)^{0,25} \cdot \left[ \frac{g \cdot \beta' \cdot \rho'^2 \cdot d_h^3 \cdot (T_w - T_{sat})}{\eta'^2} \right]^{0,1} \quad (11-10)$$

Dieser Ansatz basiert auf der Collier Korrelation. In ihr wird das Verhältnis der Prandtl - Zahlen zwischen Wand und Flüssigkeit berücksichtigt. Unter  $\beta'$  wird der isobare kubische Ausdehnungskoeffizient der flüssigen Phase verstanden [132].

Der Wärmeübergangskoeffizient der Konvektion beinhaltet die Wärmeübertragung an die einphasige Flüssigkeit und muss aufgrund einer Verstärkung des Wärmeübergangs durch die Präsenz von schneller strömendem Dampf (Verstärkung der konvektiven Turbulenz) mit dem Faktor  $F$  vergrößert werden [127]. Der „Verstärkungsfaktor“ wird für den Ansatz von Zhang et al. nach folgender Gleichung berechnet [132]:

$$F = MAX(1, F') \quad (11-11)$$

Gleichung (11-11) zur Folge wird der „Verstärkungsfaktor“ nie kleiner als 1. Die Größe  $F'$  ist eine Approximation von  $F$  und wird nach Gleichung (11-12) berechnet:

$$F' = 0,64 \cdot \Phi \quad (11-12)$$

Das Quadrat der Größe  $\Phi$  wird „Zweiphasenmultiplikator“ genannt und kann über den sogenannten „Lockhart - Martinelli - Parameter“  $X$ , wie in Gleichung (11-13) beschrieben, berechnet werden:

$$\Phi^2 = 1 + \frac{C}{X} + \frac{1}{X^2} \quad (11-13)$$

Die Konstante  $C$  wird als „Chisholm Parameter“ bezeichnet und nimmt unter der Berücksichtigung laminarer Flüssigkeits- und Dampfströmung einen Wert von 5 an, wobei von laminarer Strömung ausgegangen werden kann, sobald  $Re_{fl} < 1000$  und  $Re_g < 1000$  [144]. Die Reynolds - Zahl der gasförmigen Phase berechnet sich in Analogie zu Gleichung (11-7):

$$Re_g = \frac{\dot{M} \cdot \dot{x} \cdot d_i}{\eta''} \quad (11-14)$$

Der „Lockhart – Martinelli - Parameter“  $X$  beschreibt das Verhältnis des Druckabfalls zwischen der Flüssigkeit und dem Dampf. Er wird wie folgt definiert [132].

$$X = \left[ \frac{(dp/dz)_{fl}}{(dp/dz)_g} \right]^{0,5} = \left( \frac{\xi_{fl}}{\xi_g} \right)^{0,5} \cdot \left( \frac{1 - \dot{x}}{\dot{x}} \right) \cdot \left( \frac{\rho''}{\rho'} \right)^{0,5} \quad (11-15)$$

Die Reibungsbeiwerte für die flüssige und gasförmige Phase können nach Gleichung (11-16) kalkuliert werden, die Variable  $i$  steht jeweils für die Flüssigkeit und den Dampf [132]:

$$\begin{aligned} \xi_i &= \frac{24}{Re_i} \\ &\cdot (1 - 3,55 \cdot AR + 1,947 \cdot AR^2 - 1,701 \cdot AR^3 + 0,956 \cdot AR^4 - 0,254 \cdot AR^5) \end{aligned} \quad (11-16)$$

Gleichung (11-16) gilt unter der Voraussetzung eines rechteckigen Kanalquerschnitts und der Bedingung, dass  $Re_{fl} < 1000$  und  $Re_g < 1000$ .

Der „Verstärkungsfaktor“  $F$  kann bei der Chen-Korrelation wieder über einen Ansatz aus [127, p. 551] bestimmt werden.

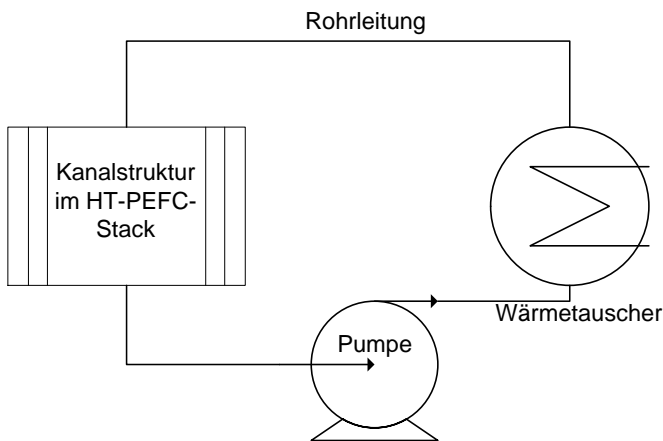
Der zweiphasige Wärmeübergangskoeffizient bei „Strömungssieden“ in einem Mikrokanal nach der Zhang et al.- bzw. Chen-Korrelation ergibt sich schließlich nach Gleichung (11-17) [133]:

$$\alpha_{TP} = S \cdot \alpha_{NB} + F \cdot \alpha_K \quad (11-17)$$

## Anhang zu Kapitel 8

### Abschätzung Pumpenleistung bei der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung

Im Vergleich mit der Luftkühlung, bei der die Leistungsaufnahme der Lüfter direkt bestimmt werden kann, kann die Leistungsaufnahme der Pumpe bei der Wärmeträgerflüssigkeitskühlung nur abgeschätzt werden, da das Gesamtsystem und die Anwendung der HT-PEFC nicht eindeutig spezifiziert ist. Es wird daher ein vereinfachter Wärmeträgerkreislauf nach Abbildung A 4 angenommen. Die Rohrleitung beschränkt sich dabei auf einen einfachen Kreislauf mit vier Umlenkungen in denen die Wärmeträgerflüssigkeitspumpe und ein Rohrbündel-Wärmetauscher integriert sind.



**Abbildung A 4: Prinzipskizze zur Abschätzung der Leistungsaufnahme der Pumpe**

Zur Bestimmung der Pumpenleistung muss der Druckverlust im System berechnet werden. Dieser setzt sich zusammen aus dem Druckverlust in der Kühlkanalstruktur der Brennstoffzelle, dem Druckverlust in der Rohrleitung (gerader Rohrabschnitt und Umlenkungen) und dem Druckverlust im Wärmetauscher. Die der Berechnung zugrundeliegende Kanalstruktur entspricht den in 5.1.1.1 vorgestellten geraden Kühlkanälen eines 10-zelligen HT-PEFC-Stacks. Für den Druckverlust in einem vergleichbaren Wärmetauscher bei einem Volumenstrom von  $7 \text{ L min}^{-1}$  wird der in der Literatur gegebene Wert von 2985 Pa verwendet [94, p. Lae10]. Zur Berechnung des Druckverlustes aufgrund der Umlenkung wird auf [94, p. Lac6] verwiesen. Für die Berechnung der Leistungsaufnahme der Pumpe wird ein Wellenwirkungsgrad der Pumpe von 0,75 und ein elektrischer Wirkungsgrad von 0,95 angenommen [144]. Damit ergeben sich in Abhängigkeit vom Volumenstrom die in Tabelle A 10 aufgelisteten Druckverluste und damit verbundenen Leistungsaufnahmen für die Pumpe. Der hier berechnete Wert bei einer maximalen Fördermenge von  $7 \text{ L min}^{-1}$  ist mit 1,2 W jedoch deutlich unter den in der Literatur gegebenen Werten für die Leistungsaufnahme von Pumpen dieser Größenordnung. Es ist davon auszugehen, dass der hier veranschlagte Druckverluste zu gering sind und

ebenfalls der Wirkungsgrad als zu hoch angesetzt ist. Daher wird im Folgenden die in der Literatur [145] gegebene Leistungsaufnahme der Pumpe von 12 W verwendet.

**Tabelle A 10: Berechnung der Leistungsaufnahme der Pumpe**

**Materialkennwerte Wärmeträgerflüssigkeit**

Dichte (160°C) / $\text{kg m}^{-3}$	901	901	901	901	901
Wärmeleitfähigkeit(160°C)/ $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$	0,158	0,158	0,158	0,158	0,158
Wärmekapazität (160 °C) / $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	2250	2250	2250	2250	2250
dynamische Viskosität / $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	0,0019	0,0019	0,0019	0,0019	0,0019

<b>Volumenstrom / <math>\text{L min}^{-1}</math></b>	<b>7</b>	<b>6</b>	<b>4</b>	<b>2</b>	<b>1</b>
Volumenstrom / $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$	0,00012	0,00010	0,00007	0,00003	0,00002

**Druckverlust in der Kanalstruktur (gerade Kanäle, 10 Zellen)**

Kanallänge / m	0,11	0,11	0,11	0,11	0,11
hydraulischer Durchmesser / m	0,0017	0,0017	0,0017	0,0017	0,0017
Fläche Kanal / $\text{m}^2$	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$0,3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-6}$
Geschwindigkeit Kanal / $\text{m s}^{-1}$	0,086	0,074	0,049	0,025	0,012
Reynoldszahl	70,3	60,2	40,1	20,1	10,0
Druckverlust Kühlkanalstruktur / Pa	178,2	152,8	101,8	50,9	25,5

**Druckverlust in der Rohrleitung (gerades Rohr,  $l=1000\text{mm}$ ,  $d_i=12\text{mm}$ )**

Kanallänge / m	1	1	1	1	1
Durchmesser / m	0,012	0,012	0,012	0,012	0,012
Fläche Rohr / $\text{m}^2$	0,00011	0,00011	0,00011	0,00011	0,00011
Geschwindigkeit Rohr/ $\text{m s}^{-1}$	1,0	0,9	0,6	0,3	0,1
Reynoldszahl	5875,2	5035,9	3357,2	1678,6	839,3
Druckverlust im Kanal/ Pa	435,9	373,6	249,1	124,5	62,3

**Druckverlust in der Umlenkung (90°) [94, p. Lac 6]**

Druckverlust / Pa	816,4	599,8	266,6	66,6	16,7
Druckverlust Gesamt / Pa	3265,4	2399,1	1066,3	266,6	66,6

**Druckverlust im Rohrbündelwärmeübertrager [94, p. Lae8]**

Druckverlust / Pa	2985	2985	2985	2985	2985
-------------------	------	------	------	------	------

**Druckverlust Gesamt**

Druckverlust / Pa	6864,6	5910,5	4402,2	3427,0	3139,4
-------------------	--------	--------	--------	--------	--------

**Leistungsaufnahme der Pumpe**

hydraulische Leistung / W	0,80	0,59	0,29	0,11	0,05
Pumpenleistung / W	1,20	0,89	0,44	0,17	0,08



## Anhang zu Kapitel 9

### Berechnung des Wärmeübergangs von der Kanalwand auf die Wärmeträgerflüssigkeit.

Analog zu der in Kapitel 5.2.1 beschriebenen Vorgehensweise wird für den in Abbildung A 5 gezeigten Kühlflowfieldbereich (rot markiert) der Wärmeübergang berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle A 11 dargestellt.

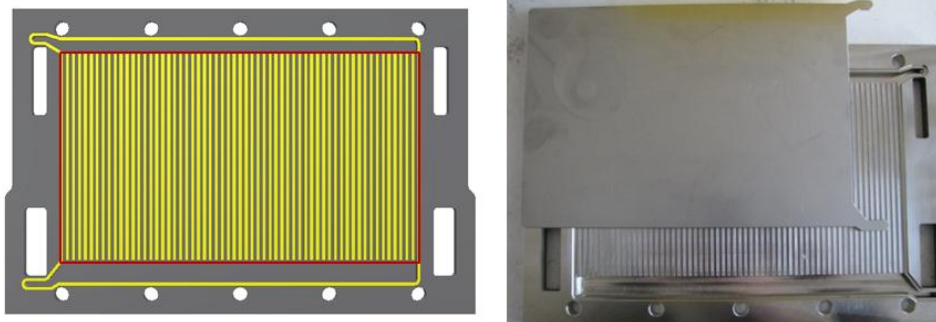


Abbildung A 5: : Auszulegender Bereich (rot markiert) des Kühlflowfields (gelb) hinsichtlich des Wärmeübergangs

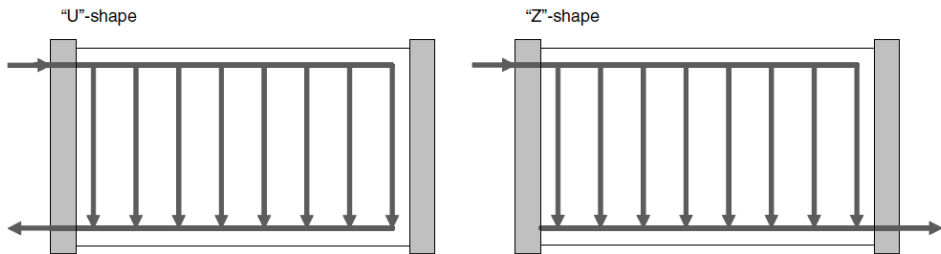
Tabelle A 11: Maximal abgeführter Wärmestrom

Wärmeträgerflüssigkeits- volumenstrom gesamt / $\text{L min}^{-1}$	Wärme- übergangszahl $/ \text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$	abgeführter Wärmestrom pro Kanal / W	abgeführter Wärmestrom pro Kühlzelle / W
6,0	309,2	3,7	222,6
5,0	304,7	3,7	219,4
4,0	300,4	3,6	216,3
3,0	296,6	3,6	213,5

Bei der Auslegung wird angenommen, dass der Wärmeträgerflüssigkeitsstrom gleichmäßig auf die Kanäle verteilt wird. Eine CFD-Simulation der Manifoldauslegung der Kühlzelle ist im nächsten Abschnitt zu finden. Dort zeigt sich, dass eine ideale Gleichverteilung der Strömung mit dieser Geometrie nicht erreicht werden kann. Dies findet in der Auslegung hinsichtlich des Wärmeübergangs jedoch keine Berücksichtigung. Eine weitere Annahme zur Berechnung ist, dass eine konstante Temperaturdifferenz zwischen Kühlmedium und Wand von 10 K herrscht. Insgesamt zeigt sich, dass zur Kühlung eines Moduls mit 12 Zellen 5 Kühlzellen notwendig sind, wenn die Stromdichte auf  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  begrenzt wird. Da jedoch die Temperaturdifferenz zwischen Kühlmedium und Wand mehr als 10 K betragen darf, ist eine ausreichende Wärmeabfuhr auch bei höheren Stromdichten gewährleistet.

### Auslegung des Manifolds der Kühlzelle

Um eine möglichst homogene Wärmeverteilung zu erreichen, ist eine möglichst homogene Strömungsverteilung des Kühlmediums anzustreben. Bisher wurde dieses Problem durch sehr große externe Manifolds gelöst, die die gerade Kanalstruktur gleichmäßig versorgt haben. Ein großes Problem war aber die Abdichtung dieser externen Manifolds zur Umgebung und vor allem zur Gasseite hin. Aus diesem Grund wurde entschieden, die Manifolds in die Kühlzellen zu integrieren. Die geometrischen Randbedingungen werden also von der Konstruktion der Kühlzelle limitiert. Aufgrund der bisher gemachten Erfahrung mit geraden Kanälen, die einen geringen Druckverlust im Vergleich zu Mäandern aufweisen [146], soll das Design der Kanalstruktur übernommen werden. Ebenfalls bleibt das Verhältnis Kanalbreite zur Stegbreite gleich, das heißt, dass beide jeweils 2 mm breit sind. Die Kanaltiefe beträgt gleichermaßen 2 mm. Obwohl die Kanalbereiche die aktive Fläche komplett überziehen sollte, kann aus strömungstechnischen Gründen die Kanallänge in einem gewissen Rahmen variieren. Das Strömungsbild kann entweder einer U-Strömung oder einer Z-Strömung entsprechen (vgl. Abbildung A 5).



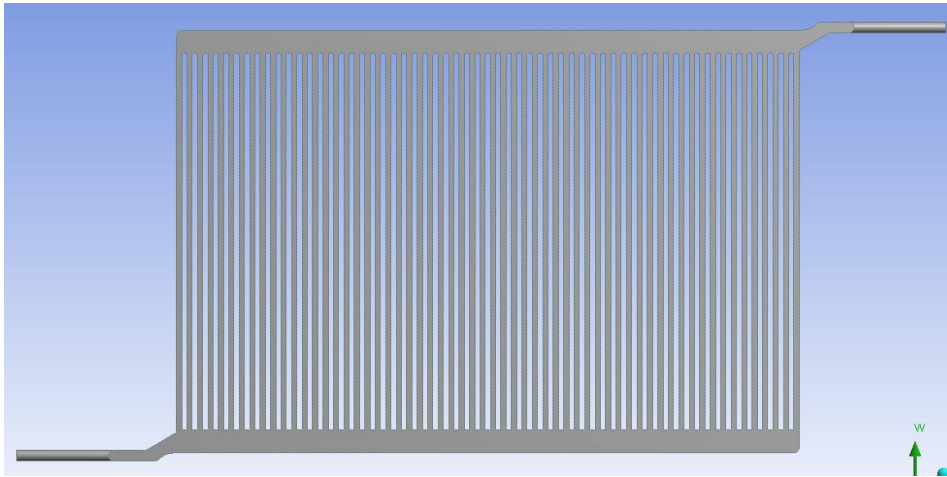
**Abbildung A 6: Schematisches Strömungsbild im Stack [147]**

Aus fertigungstechnischen Gründen beschränkt sich die Höhe der auszulegenden Verteiler- und Sammlermanifolds ebenso wie die Tiefe. Das Strömungsmedium ist die bereits beschriebene Wärmeträgerflüssigkeit. Der Volumenstrom entspricht dem in Tabelle A 11 berechneten Volumenstrom von  $6 \text{ L min}^{-1}$ .

Im Rahmen dieser zahlreichen beschränkenden Randbedingung soll eine Auslegung der Verteiler- und Sammlermanifolds durchgeführt werden, um eine möglichst homogene Strömungsverteilung in den Kanälen zu gewährleisten. Als ein erstes Designkriterium wird die in der Literatur häufig zu findende Angabe bezüglich des Druckverlustverhältnisses zwischen Manifold und Kanälen von  $\Delta p_{\text{Manifold}} / \Delta p_{\text{Kanäle}} = 10$  gewählt [89, p. 156]. Der Druckverlust über die parallel angeordneten geraden Kanäle entspricht dem Druckverlust eines einzelnen Kanals unter der Annahme einer idealen Strömungsverteilung. Analytisch berechnet werden kann der Druckverlust mit Hilfe der empirischen Gleichung für Druckverluste:

$$\Delta p_{v12} = \frac{\rho \cdot v^2}{2} \left( \lambda \frac{l}{d_h} + \sum \zeta_i \right)$$

Durch die Verwendung des hydraulischen Durchmessers besteht die Möglichkeit, die Gleichung für die Rohrreibungszahl ( $\lambda=57,9/\text{Re}$  [148, p. 365]) für eine laminare Strömung durch ein Rohr zu verwenden. Der Term  $\sum \zeta_i$  gibt dabei den Anteil des Druckverlustes durch Umlenkungen, Anbauteile, Querschnittsänderungen und Ähnliches an und hat für das gerade Kanalstück den Wert null. Der Druckverlust des laminar durchströmten Kühlkanals ist somit für den hier vorliegenden Betriebszustand  $\Delta p_{v12} = 215 \text{ Pa}$ . Im Manifold wird nur der Druckverlust aufgrund der Wandreibung berücksichtigt, der Druckverlust aufgrund der Massenstromverringern durch den Eintritt in die Kanäle bleibt unberücksichtigt. Für den ersten Ansatz eines Manifolds (vgl. Abbildung A 7) mit einer quadratischen Querschnittsfläche von  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  ergibt sich ein Druckverlust von  $\Delta p_{\text{Manifold}} = 81 \text{ Pa}$ .



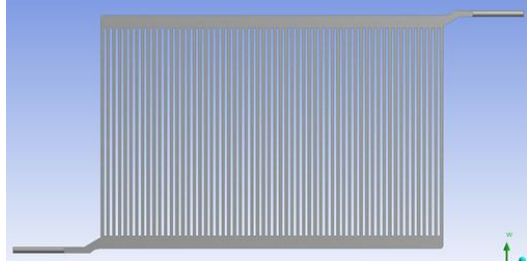
**Abbildung A 7: Wärmeträgerflüssigkeits-Flowfield mit  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  Querschnittsfläche des Verteiler- und Sammlermanifolds und Z-Strömung**

Aufgrund der baulichen Randbedingungen ist eine Vergrößerung der Querschnittsfläche von  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  nur sehr bedingt möglich. Damit ist das zur optimierten Strömungsverteilung notwendige Druckverhältnis von 10 nicht gegeben. Ein Kriterium zur Beurteilung der Gleichverteilung des Strömungsmediums in die Kanäle ist der Druckverlustverlauf in dem Verteiler- bzw. Sammlermanifold. Ist die Differenz des statischen Drucks zwischen Verteiler- und Sammlermanifold hoch, erfolgt eine homogene Volumenstromverteilung in die Kanäle.

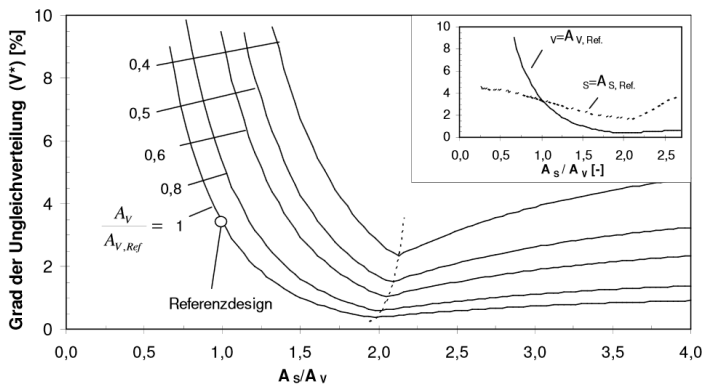
Um dies zu überprüfen wurde mittels des kommerziellen Strömungslösers Fluent die Strömung in dem Wärmeträgerflüssigkeits-Flowfield simuliert. Der damit berechnete statische Druck über die Manifoldlänge ist in Tabelle A 12 dargestellt.

Tabelle A 12: Massenstromverteilung in den Kanälen

Kanal vom Strömungseintritt her gesehen	Massenstrom in kg/s
1	-0,00029
5	0,00030
10	0,00029
15	0,00030
20	0,00030
25	0,00031
30	0,00033
35	0,00035
40	0,00038
45	0,00042
50	0,00048
55	0,00055
60	0,00064



Da die Verteilung des statischen Druckes im Verteilermanifold sehr homogen ist, muss nur noch ein Weg gefunden werden, diese Homogenität auch im Sammlermanifold zu gewährleisten. Eine Möglichkeit ist hierbei, die Flächenverhältnisse des Sammler- zum Verteilermanifold zu verändern. In der Literatur wird dazu ein Verhältnis  $A_s/A_v=2$  empfohlen wie aus Abbildung A 8 zu erkennen ist [149, p.101]



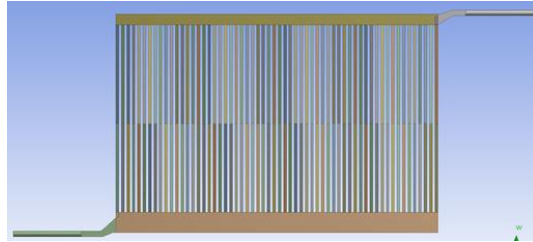
**Abbildung A 8: Grad der Ungleichverteilung als Funktion des Manifoldflächenverhältnisses [149, p. 101]**

Aufgrund der geometrischen Randbedingungen ist eine Vergrößerung des Manifoldquerschnitts nur durch eine Verringerung der Kanallänge zu erreichen. Damit wird das Sammlermanifold auf eine Querschnittsfläche von  $8 \times 15 \text{ mm}^2$  vergrößert und somit annähernd verdoppelt. Die Strömung wurde wiederum mit gleichen Randbedingungen in

Fluent simuliert. Der Verlauf des statischen Drucks in den Manifolds ist in Tabelle A 13 aufgeführt.

**Tabelle A 13: Massenstromverteilung in den Kanälen**

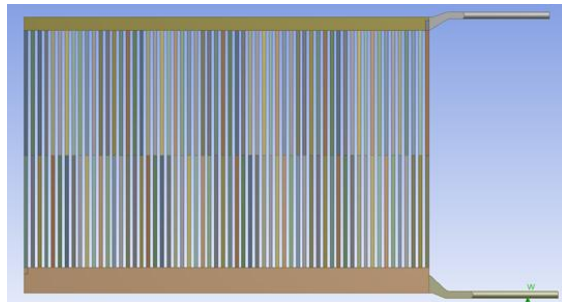
Kanal vom Strömungseintritt her gesehen	Massenstrom in kg/s
1	-0,00049
5	0,00033
10	0,00036
15	0,00036
20	0,00036
25	0,00037
30	0,00038
35	0,00039
40	0,00041
45	0,00043
50	0,00046
55	0,00048
60	0,00048



Im Bereich der ersten 3 Kanäle ist jedoch immer noch eine Rückströmung vorhanden. Verursacht wird die vor allem durch den Eintrittsbereich in das Manifold. Dieser ist jedoch aus konstruktiven Gründen nicht veränderbar. Um dennoch die Rückströmung zu verringern soll die Möglichkeit einer u-förmigen Strömungsführung in Betracht gezogen werden. Die mit Hilfe von Fluent berechnete statische Druckverteilung in den Manifolds ist in Tabelle A 14 dargestellt.

**Tabelle A 14: Massenstromverteilung in den Kanälen**

Kanal vom Strömungseintritt her gesehen	Massenstrom in kg/s
1	-0,00028
5	0,00050
10	0,00043
15	0,00042
20	0,00042
25	0,00040
30	0,00039
35	0,00038
40	0,00038
45	0,00038
50	0,00038
55	0,00038
60	0,00038



Die Differenz der statischen Drücke zwischen Verteiler- und Sammlermanifold hat sich weiter angenähert. Eine bessere Gleichverteilung der Strömung in die Kanäle wird also erreicht. Die Rückströmung hat sich ebenfalls etwas verbessert wie in Tabelle A 14 zu erkennen ist.

Insgesamt lässt sich aus der Analyse der Simulationen schließen, dass eine zur Kühlung der Brennstoffzelle ausreichende Gleichverteilung des Volumenstroms in die einzelnen Kühlkanäle mit der Manifold-Querschnittsfläche von  $8 \times 15 \text{ mm}^2$  erreicht wird. Eine Rückströmung in den ersten drei Kanälen ist jedoch nicht gänzlich zu verhindern. Das beste Strömungsbild hinsichtlich der Rückströmung ist mit einer u-förmigen Strömungsanordnung zu erzielen. Dieses Flowfield kann also abschließend als das am besten geeignete betrachtet werden.

### **Berechnung der Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle für einen Stack mit gekapselten Kühlzellen bei einer Kühlung von nur jeder dritten Zelle**

Analog zu den in Kapitel 5.2.1 vorgestellten Vereinfachungen gelten für das Stackmodell mit  $320 \text{ cm}^2$  aktiver Fläche folgende Randbedingungen:

- Erzeugte Wärme homogen verteilt
- Kein Temperaturgradient über der MEA-Fläche
- Vollständige Wärmeabfuhr über die Kühlzellen
- Adiabate Oberflächen

Die zur Berechnung notwendige Wärmeleitfähigkeit wird mit Hilfe der Gleichung (5-4) berechnet.

$$\lambda = b_{\text{Zelle}} \cdot \left( \frac{0,008}{15} + \frac{2 \cdot 0,001}{20} + \frac{2 \cdot 0,001}{10} + \frac{2 \cdot 2,5 \cdot 10^{-4}}{1,6} + \frac{8 \cdot 10^{-5}}{40} \right)^{-1} \quad (11-18)$$

$$= 11 \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$$

Zur Berechnung des erzeugten Wärmestroms pro Zelle liegen keine experimentell ermittelten Strom/Spannungs-Kennlinien vor. Stattdessen wird die Wärmeerzeugung anhand von hochskalierten Werten der Kennlinie in Abbildung 3-2 und der Energiebilanzgleichung (3-22) berechnet. Die Randbedingungen für die Berechnung der Energiebilanz sind:

- Stationärer Betriebszustand
- Betrieb mit synt. Reformat und Luft ( $\lambda=2/2$ )
- Eintrittstemperatur der Gase  $160 \text{ }^\circ\text{C}$
- Austrittstemperatur der Gase  $170 \text{ }^\circ\text{C}$
- $A_{\text{aktiv}} = 320 \text{ cm}^2$  pro Zelle
- 12 Zellen
- Isolierter Stack (adiabat)



## Danksagung

Die vorliegende Arbeit konnte in dieser Art und Weise natürlich nicht ohne die tatkräftige Unterstützung vieler netter Menschen, die ich in den drei Jahren meiner Dissertation kennen und schätzen gelernt habe, entstehen. Allen die beteiligt waren möchte ich daher ein sehr großes Dankeschön aussprechen.

Ein großer Dank geht an meinen Doktorvater Herrn Professor Lehnert, der mir die Möglichkeit gegeben hat meine eigenen Ideen zu verwirklichen und mir immer mit seinem exzellenten fachkundigen Rat zur Seite gestanden hat.

Für die Übernahme der Zweitberichterstattung möchte ich Herrn Professor Wagner und für den Prüfungsvorsitz Frau Professor Jeschke danken.

Unserem Institutsleiter Herrn Professor Stolten gebührt der Dank für die Bereitstellung der großartigen Arbeitsbedingungen am IEK-3.

Ohne die tatkräftige Unterstützung des Laborteams der Gruppe HPB sowie der Bachelor- und Masteranden wäre die Arbeit nicht das was sie jetzt ist. Daher geht mein Dank an Birgit Schumacher, Jens Bohner, Matthias Prawitz, Irina Kühn, Jannik Ehlert, Daniel Krekel und Julia Doering.

Ein besonders großes Dankeschön geht an Holger Janßen für seine zahllosen Korrekturen, die fachliche Unterstützung und den Rat, mit dem er mir stets zur Seite gestanden hat.

Danke auch an alle Kollegen des IEK-3, die mit ihrer netten Art und Hilfsbereitschaft für ein phantastisches Arbeitsklima gesorgt haben. Insbesondere der „halb-eins-Essensgruppe“ gilt der Dank für die tägliche angenehme Abwechslung vom Arbeitsalltag beim Mittagessen. Ein großes Dankeschön an alle Doktoranden mit denen ich auch privat sehr viel unternommen habe.

Danke Jan und Anne, die für mich nicht nur Kollegen waren sondern auch sehr enge Freunde geworden sind.

Bedanken möchte ich mich ebenfalls bei allen meinen Freunden, für die ich insbesondere in der Endphase der Dissertation wenig Zeit hatte, die aber trotzdem immer für mich da waren.

Für meine Freundin Sonja: Danke für deine Liebe. Du hast mich stets unterstützt und vor allem große Nachsicht und Geduld bewiesen, als ich mehr mit der Dissertation als mit allem Anderen beschäftigt war.

Der größte Dank geht an meine Eltern und meinen Bruder, einfach für alles was ihr mir mit auf den Weg gegeben habt und mir ermöglicht habt.





Band / Volume 197

**Institute of Energy and Climate Research**

**IEK-6: Nuclear Waste Management - Report 2011 / 2012**

**Material Science for Nuclear Waste Management**

M. Klinkenberg, S. Neumeier, D. Bosbach (Eds.) (2013), 195 pp

ISBN: 978-3-89336-980-1

Band / Volume 198

**Material migration in tokamak plasmas with a three-dimensional boundary**

R. Laengner (2013), vi, 140, XVII pp

ISBN: 978-3-89336-924-9

Band / Volume 199

**Improved characterization of river-aquifer interactions through data assimilation with the Ensemble Kalman Filter**

W. Kurtz (2013), xxv, 125 pp

ISBN: 978-3-89336-925-6

Band / Volume 200

**Innovative SANEX process for trivalent actinides separation from PUREX raffinate**

A. Sypula (2013), 220 pp

ISBN: 978-3-89336-927-0

Band / Volume 201

**Transport and deposition of functionalized multi-walled carbon nanotubes in porous media**

D. Kasel (2013), 103 pp

ISBN: 978-3-89336-929-4

Band / Volume 202

**Full-waveform inversion of surface ground penetrating radar data and coupled hydrogeophysical inversion for soil hydraulic property estimation**

S. Busch (2013), 112 pp

ISBN: 978-3-89336-930-0

Band / Volume 203

**Politiksznarien für den Klimaschutz VI –**

**Treibhausgas-Emissionsszenarien bis zum Jahr 2030**

**Advances in Systems Analysis 5**

P. Hansen, S. Gores und F. Chr. Matthes (Hrsg.)

(2013), XX, 257 pp

ISBN: 978-3-89336-932-4

Band / Volume 204

**Effect of Composition, Microstructure and Component Thickness on the Oxidation Behaviour of Laves Phase Strengthened Interconnect Steel for Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)**

C. Asensio Jimenez (2014), 210 pp

ISBN: 978-3-89336-935-5

Band / Volume 205

**Airborne VOC measurements on board the Zeppelin NT during the PEGASOS campaigns in 2012 deploying the improved Fast-GC-MSD System**

J. Jäger (2014), VIII, 182 pp

ISBN: 978-3-89336-936-2

Band / Volume 206

**Pulvermetallurgische Funktionsbauteile aus NiTi- und NiTi-X Legierungspulvern**

M. Bitzer (2014), III, 144 pp

ISBN: 978-3-89336-937-9

Band / Volume 207

**Zinkoxid: Einfluss von Dotierung und Legierungen auf elektro-optische Eigenschaften, auf das Ätzverhalten und auf die Tempornachbehandlung**

M. Warzecha (2014), 8, vii, 170 pp

ISBN: 978-3-89336-938-6

Band / Volume 208

**SGSreco - Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte  $\gamma$ -Scan Messungen**

T. H. Krings (2014), ix, 181, XI

ISBN: 978-3-89336-945-4

Band / Volume 209

**Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks**

J. Supra (2014), III, 191 pp

ISBN: 978-3-89336-946-1

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zwb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



Ein typischer Anwendungsbereich der Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC) ist die Bordstromerzeugung in mobilen Anwendungen. Die Betriebstemperatur liegt über 120 °C und ist aus Gründen der Festigkeitsgrenzen verwendeter Materialien und Lebensdauieranforderungen auf maximal 180 °C beschränkt. Aufgrund des hohen Temperaturniveaus kann die neben dem Strom erzeugte Wärme in dem System oder der Anwendung effizient weiterverwendet werden. Gegenstand dieser Arbeit ist die Untersuchung verschiedener möglicher Kühlkonzepte hinsichtlich ihrer Eignung für den Einsatz in der HT-PEFC, vor allem im Hinblick auf die Verwendung als Bordstromerzeugungseinheit im Verbund mit einem Brenngaserzeugungssystem.

**Autor:**

Jen Supra studierte an der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen (RWTH Aachen) Maschinenbau mit der Studienrichtung Luftfahrttechnik. Von 2010 bis 2013 beschäftigte er sich am Institut für Energie- und Klimaforschung – Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) im Forschungszentrum Jülich mit der Untersuchung von Kühlkonzepten für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks zur Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen. Der Inhalt dieses Buches wurde von der RWTH Aachen als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Ingenieurwissenschaften genehmigt.

**Institut:**

Die Forschungsaufgaben des Instituts für Energie- und Klimaforschung – Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) sind auf die Realisierung von Hoch- und Niedertemperaturbrennstoffzellen sowie von entsprechenden Stacks oder Systemen für stationäre oder mobile Anwendungen ausgerichtet. Ferner umfassen die verfahrens- und systemtechnischen Entwicklungen die Bereitstellung von Apparaten zur Brenngaserzeugung. Diese Arbeiten werden von physikalisch-chemischen Grundlagenuntersuchungen sowie systemanalytischen Studien der Energieverfahrenstechnik begleitet.